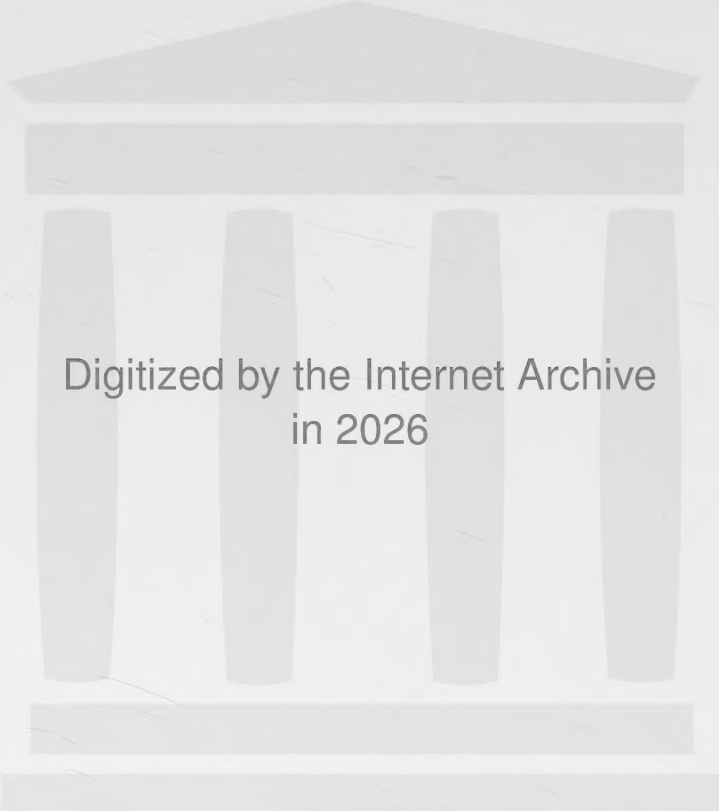


**Magnonen, Phononen und Exzitonen
von MnF_2**

Manfred Poppinger

1974



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551921_0009

Magnonen, Phononen und Exzitonen

von MnF_2

Inaugural-Dissertation zur Erlangung
des Doktorgrades der Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
Manfred Poppinger
aus
Eisleben
1974

1. Berichterstatter: Prof. Dr. J. Brandmüller
2. Berichterstatter: Prof. Dr. H. Bross

Tag der mündlichen Prüfung: 16.12.1974

Meinen Eltern
und
meiner Frau
gewidmet





Die Arbeit befaßt sich mit der ramanspektroskopischen Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Zweimagnonenstreuung an MnF_2 und mit theoretischen Berechnungen unterhalb von T_N , mit der ramanspektroskopischen Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Phononen von MnF_2 und MgF_2 und mit der Untersuchung der Emission von MnF_2 im Bereich um $18\,400\text{ cm}^{-1}$ bei tiefen Temperaturen.

Inhaltsverzeichnis

Seite

	Einleitung	1
I.	Theoretische Grundlagen	5
1.	Der ferromagnetische Isolator	6
1.1.	Die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators	8
1.2	Die Holstein-Primakoff-Transformation	9
1.3	Spinwellendispersion für zwei Spezialfälle	13
1.4	Renormierung der Spinwellenenergie. Zweizeitige, temperaturabhängige Green'sche Funktionen	14
1.4.1	Das Anregungsspektrum	18
2	Der antiferromagnetische Isolator	22
2.1	Der Hamiltonoperator	22
2.2	Diagonalisierung des antiferromagnetischen Hamiltonoperators	23
2.3	Die Spinwellendispersion von MnF_2	27
2.4	Glieder höherer Ordnung im antiferro- magnetischen Hamiltonoperator	31
2.5.	Einteilchen Greenfunktionen für den antiferromagnetischen Isolator	33
2.5.1	Wechselwirkungsfreie Spinwellen	34
2.5.2	Berücksichtigung der wechselwirkenden Spinwellen	36
2.5.3	Physikalische Bedeutung der Näherung	38
2.5.4	Die Untergittermagnetisierung	39
2.6	Diskussion der renormierten Spinwellen- energie	40
2.6.1	Einfacher isotroper Antiferromagnet	41
2.6.2	Spinwellenrenormierung für MnF_2	43

	Seite
3	Ramanstreuung an Magnonen 45
3.1	Der effektive Wechselwirkungs-Hamilton-operator für Zweimagnonen-Ramanstreuung an MnF_2 46
3.2	Der Streuquerschnitt für Zweimagnonen-Ramanstreuung 47
3.2.1	Der Fall der freien Spinwellen 51
3.2.2	Ramanstreuquerschnitt bei Wechselwirkung der Spinwellen 57
3.2.3	Vergleich der Ausdrücke (3.48), (3.49) und (3.50) mit publizierten Ergebnissen 69
II.	Ramanspektroskopische Untersuchung von MnF_2 und MgF_2 72
1.1	Experimentelle Anordnung 72
1.2	Kristalle 78
2	Ramanstreuung an Phononen des MnF_2 und MgF_2 79
2.1	Kristallstruktur und einige Eigenschaften von MnF_2 80
2.2	Gruppentheoretische Aussagen über das Phononenspektrum 82
2.3	Temperaturverhalten der Phononen 91
2.3.1	Temperaturverhalten der Phononen von MnF_2 94
2.3.2	Temperaturverhalten der Phononen von MgF_2 106
2.3.3	Zusammenfassender Vergleich der Messungen an MnF_2 und MgF_2 110
3	Ramanspektroskopische Untersuchung der Spinwellen 111
3.1	Gruppentheoretische Aussagen 111
3.2	Ramanstreuung erster Ordnung an Magnonen 115
3.3	Ramanstreuung zweiter Ordnung an Spinwellen 116
3.3.1	Zweimagnonen-Ramanstreuung bei 5K 116

	Seite
3.3.2 Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen	126
3.3.3 Temperaturabhängigkeit der Zweimagnonenstreuung	135
3.3.3.1 Temperaturabhängigkeit der Energie	140
3.3.3.2 Vergleich der Messungen mit der Theorie von Pershan und Oseroff	149
3.3.4 Temperaturverhalten von Intensität und Halbwertsbreite	152
3.3.4.1 Integrierte Intensität	152
3.3.4.2 Maximumsintensität und Halbwertsbreite	153
III. Untersuchung der Fluoreszenz von MnF_2 im Bereich von $18\,500\text{ cm}^{-1}$ bis $17\,000\text{ cm}^{-1}$	162
1.1 Die Zustände des Mn^{++} -Ions im Kristallfeld	163
1.2 Übergänge zwischen $A_{1g}(^6S)$ und $T_{1g}(^4G)$	165
1.3 Exzitonen und Exziton-Magnon-Zustände von MnF_2	166
2 Experimentelle Anordnung	172
3 Ergebnisse der Untersuchung der Fluoreszenz	174
3.1 Die Linien zwischen $18\,350$ und $18\,470\text{ cm}^{-1}$	177
3.2 Fehlstelleninduzierte Übergänge	195
3.2.1 Die Linien um $18\,400\text{ cm}^{-1}$	199
3.2.2 Die Linien um $18\,300\text{ cm}^{-1}$	202
3.2.3 Die Linien um $18\,100\text{ cm}^{-1}$	204
3.2.4 Die analogen Banden der kristalleigenen und der störstelleninduzierten Strukturen	211
3.2.5 Temperaturabhängigkeit der Fluoreszenzbande	215
Zusammenfassung	219
Anhang	
Literatur	

Einleitung

Das Konzept der Spinwellen als niedrig energetische Anregungen eines Ferromagneten wurde 1930 von F.Bloch /3/ eingeführt. Er zeigte, daß die daraus folgenden thermodynamischen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen im Einklang mit dem Experiment stehen. Bethe /97/ untersuchte die Folgen der Wechselwirkung der Spinwellen für eine lineare Kette von Spins. Diese Untersuchungen ergaben, daß in diesem Fall auch gebundene Zustände mehrerer Spins auftreten.

1940 schlugen Holstein und Primakoff /4/ eine Transformation von den Spinoperatoren zu Boseoperatoren vor, die in der Folgezeit in vielen Fällen zum Ausgangspunkt der Untersuchung von ferro- und antiferromagnetischen Systemen wurde. Die Gleichungen dieser Transformation haben jedoch den entscheidenden Nachteil, daß sie nicht linear sind. Im allgemeinen wird die auftretende Wurzel entwickelt und die Entwicklung nach wenigen Gliedern abgebrochen. Damit zerfällt der Hamiltonoperator in verschiedene Glieder, von denen das erste quadratisch in den neuen Operatoren ist und zur Theorie von Bloch führt. Ein weiteres Glied des Hamiltonoperators wird manchmal als Störglied berücksichtigt und beschreibt dann die Wechselwirkung der Spinwellen. Die Vernachlässigung Glieder höherer Ordnung in der Entwicklung geschieht eher aus praktischen, denn aus physikalischen Gründen, obwohl nicht von vornherein klar ist, ob die entsprechenden Terme tatsächlich als Störglieder im Sinn der Störungsrechnung aufzufassen sind. Dyson /5/ untersucht deshalb die Wechselwirkung der Spinwellen von einem anderen Standpunkt aus. Jedoch konnte Oguchi /98/ zeigen, daß man mit der Holstein-Primakoff-Transformation und Entwicklung der Wurzel im wesentlichen dieselben Ergebnisse wie Dyson erhält.

Die Spinwellentheorie für Antiferromagnete wurde wesentlich durch die Arbeiten von Anderson /99/ und Kubo /10/ beeinflusst.

Der Nachweis der Spinwellen in optischen Experimenten gelang erst vor weniger als zehn Jahren. Bereits 1959 und 1963 diskutierten Bass und Kaganov /17/ bzw. Elliott und Loudon /18/ die Möglichkeit der Ramanstreuung an Spinwellen, wobei die russischen

Autoren eine Kopplung über den magnetischen Dipolterm und die Engländer über den elektrischen Dipolterm vorschlugen. Die Entwicklung des Lasers verhalf den Experimentatoren zu einem leistungsfähigen Hilfsmittel auch schwache Effekte nachzuweisen. Ehe jedoch Fleury die Ramanstreuung experimentell 1966 an FeF_2 , /22/, Ein- und Zweimagnonenstreuung, und 1967 an MnF_2 , /100/, /19/, Zweimagnonenstreuung, und NiF_2 , /27/, /70/, Ein- und Zweimagnonenstreuung, gelang, konnten Greene, Sell et al. 1965 eine Spinwellenseitenbande im optischen Absorptionsspektrum von MnF_2 , /75/, nachweisen.

Diesen Messungen gingen Untersuchungen der Absorption im fernen Infrarot an FeF_2 1964 durch Silvera und Tinkham /101/ und an CoF_2 1965 durch Richards /102/ voraus. Die Messungen von Silvera und Tinkham an FeF_2 waren wohl die ersten dieser Art an Antiferromagneten überhaupt. Allerdings war zu diesem Zeitpunkt die Erklärung der beobachteten Linie von FeF_2 bei 154.4 cm^{-1} , eine Zweimagnonenbande, nicht klar. Ein unerwartetes Ergebnis dieser Untersuchungen war die Stärke der Zweimagnonenbanden in den Raman- und Absorptionsmessungen.

In der Folgezeit gingen die theoretischen Anstrengungen in die Richtung der Klärung der starken Zweimagnonenlinien, die in den verschiedenen Experimenten beobachtet wurden, /24/, /25/, /26/.

Inzwischen wurde eine große Anzahl von Antiferromagneten Raman-spektroskopisch untersucht, so z.B. die kubischen Antiferromagnete RbNiF_3 /103/, /38/, RbMnF_3 (Fleury /23/) und KNiF_3 /104/, /38/, das zweidimensionale K_2NiF_4 (Fleury et al. /23/) oder auch die α -Phase des Sauerstoffs (Mathai und Allin /23/). Es konnte auch bereits Ramanstreuung an vier Magnonen in NiO und KNiF_3 beobachtet werden /105/.

Alle Messungen der Zweimagnonenbanden zeigten mehr oder weniger deutlich, daß die Maximumsposition nicht einfach durch $2\omega_B$ bestimmt ist, wobei ω_B die Spinwellenenergie eines bestimmten Bereiches der Oberfläche der Brillouin Zone ist. Im zweidimensionalen K_2NiF_4 ist dieser Wert 616 cm^{-1} , während die Maximumsposition bei 520 cm^{-1} liegt (Fleury et al. /23/). Bei MnF_2 liegt die Differenz dagegen in der Größenordnung von 1 cm^{-1} und wurde deshalb in den ersten Arbeiten nicht beachtet /19/.

Dieses experimentelle Ergebnis erklärten Elliott und Thorpe /29/ durch die Besonderheit der Zweimagnonenanregung, bei der in einem Zweizentrenprozeß zwei benachbarte Ionen simultan ihren Spin um eine Einheit ändern. Die Spinwellen werden in nächster Nachbarschaft erzeugt und wechselwirken stark miteinander. Auf Grund dieser Vorstellung konnten die Zweimagnonenbanden und auch die Spinwellenseitenbanden, siehe Teil III dieser Arbeit, in guter Übereinstimmung mit dem Experiment erklärt werden.

Nach Klärung dieser Frage verlagerte sich in den letzten Jahren das theoretische Interesse zunehmend auf die Temperaturabhängigkeit von Zweimagnonen-Ramanstreuung und -Absorption.

Es wurden theoretische Untersuchungen für verschiedene Systeme durchgeführt, auf die im Teil I der Arbeit verwiesen wird. Oftmals können die theoretischen Ergebnisse jedoch nicht mit dem Experiment verglichen werden, weil Spektren bei verschiedenen Temperaturen im allgemeinen nur selten veröffentlicht werden. Teilweise wird auch von einem Hamiltonoperator ausgegangen, der das betrachtete System nur grob beschreibt.

Da die Spinwellendispersion von MnF_2 nach den Messungen von Okazaki et al. /12/ durch Nikotin et al. /13/ mit Hilfe der Neutronenstreuung neu untersucht wurde und in der Näherung des effektiven Anisotropiefeldes die Austauschparameter zwischen den ersten drei nächsten Nachbarn neu bestimmt wurden, erschien es sinnvoll, die Theorie für die Renormierung der Spinwellenenergie und für die Zweimagnonen-Ramanstreuung unter Berücksichtigung dieser drei Austauschparameter auszuarbeiten und mit den experimentellen Ergebnissen zu vergleichen.

Die vorliegenden Untersuchungen anderer Systeme ergaben, daß die Dämpfung der Spinwellen eine große Rolle spielt. Theoretisch wird die große Dämpfung noch nicht verstanden. Deshalb erschien es auch sinnvoll Dämpfungskonstanten abzuschätzen, um für theoretische Überlegungen Daten vorliegen zu haben.

Da die Untersuchung auch die Temperaturabhängigkeit der Intensität einschloß, war ein Intensitätsstandard nötig, um Schwankungen der experimentellen Bedingungen auszugleichen. Hier bot sich das Phononenspektrum an, das aus diesem Grund in vergleichenden Messungen mit MgF_2 untersucht wurde.

Wie wesentlich das Verständnis des Spinwellenkonzepts und der Zweizentrenprozesse auch für andere Eigenschaften von Antiferromagneten ist, soll in Teil III der Arbeit gezeigt werden. Dort werden die Ergebnisse der Untersuchung der Emission, die ganz wesentlich durch die Magnonen und ihre Wechselwirkung mit Exzitonen beeinflusst ist, erläutert.

I. Theoretische Grundlagen

In diesem Abschnitt wird zunächst die Theorie der Spinwellen für einen ferromagnetischen Isolator umrissen. Dabei werden die Bezeichnungen für die nachfolgenden Abschnitte festgelegt und an diesem einfachen Fall insbesondere die Anwendung von zweizeitigen, temperaturabhängigen Green'schen Funktionen zur Berechnung von Korrelationsfunktionen dargestellt.

Im Anschluß daran wird der Fall des einfachen antiferromagnetischen Isolators eingehend behandelt. Mit Hilfe der Green'schen Funktionen wird die Temperaturabhängigkeit der Magnonenenergie in Spinwellennäherung und der Streuquerschnitt für Zweimagnonen-Ramanstreuung berechnet. Die Ergebnisse dieses Abschnittes werden mit dem Experiment verglichen.

Bezüglich weitergehender Fragen in der Spinwellentheorie wird z.B. auf /1/ und die dort angegebene Literatur verwiesen. Den Ausgangspunkt für alle Überlegungen bildet ein effektiver Spinhamiltonoperator, der die Austauschwechselwirkung zwischen Elektronen an verschiedenen Orten des Kristalls berücksichtigt. Es wird nur die Heisenberg'sche Form betrachtet, wo die effektiven Spinoperatoren mit den Operatoren für den Gesamtspin der Ionen identifiziert werden. In diesem speziellen Hamiltonoperator werden alle Beiträge des Bahndrehimpulses zur magnetischen Ordnung vernachlässigt. Der Heisenberg'sche Spinhamiltonoperator beschreibt befriedigend Systeme mit $L = 0$ oder gelöschtem L , wie zum Beispiel Verbindungen des Mn^{++} -Ions, wie MnF_2 oder $RbMnF_3$, beziehungsweise solche von Fe^{++} , wie FeF_2 . Elliott und Thorpe /2/ erörtern den Einfluß des Bahndrehimpulses auf die Austauschwechselwirkung und entwickeln als Beispiel explizit den Hamiltonoperator für UO_2 .

1. Der ferromagnetische Isolator

Der Heisenberg'sche Spinhamiltonoperator für die Austauschwechselwirkung hat die Form

$$\tilde{H}^S = - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_{\ell \neq \ell'} J(\vec{r}^1 - \vec{r}^{1'}) \tilde{S}_1 \cdot \tilde{S}_1',$$

$\tilde{S}_1$ ist der Operator für den Gesamtspin der am Ionenort $\vec{r}^1$ lokalisierten Elektronen und $J(\vec{r}^1 - \vec{r}^{1'})$ das Austauschintegral zwischen den Ionen $\vec{r}^1$ und $\vec{r}^{1'}$, das hier positiv ist. Da das Austauschintegral von der Überlappung der Wellenfunktionen der zwei Ionen abhängt, wird es im Fall des Isolators, wo die Wellenfunktionen stark an den Ionenorten lokalisiert sind, nur für Ionenabstände in der Größenordnung weniger Gitterkonstanten von Null verschieden sein. Die Summe im Hamiltonoperator läuft über alle Gitterplätze. Im allgemeinen wird der Ort eines Ions im Kristall durch zwei Vektoren beschrieben. Der eine bezeichnet die Elementarzelle und der andere den Ort in der Elementarzelle. Die Summation über l ist somit eine doppelte, über die Einheitszellen und über die Basis der Einheitszelle.

Im folgenden wird ein einfacher Ferromagnet mit einem magnetischen Ion in der Elementarzelle betrachtet. Zur Abkürzung der Schreibweise wird für $\vec{r}^1 = l_1 \vec{a}_1 + l_2 \vec{a}_2 + l_3 \vec{a}_3$ oft $\vec{l}$ geschrieben. Die Anzahl der Elementarzellen sei N und die Spinquantenzahl s . Um eine Raumrichtung, auf die die Spinrichtungen bezogen werden, auszuzeichnen, wird ein äußeres statisches Magnetfeld B berücksichtigt, das die Richtung $(0,0,1)$ haben möge. Der gesamte Hamiltonoperator hat dann die Form:

$$\tilde{H} = - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_{\vec{\ell} \neq \vec{\ell}'} J(\vec{l} - \vec{l}') \tilde{S}_1 \cdot \tilde{S}_1' - \frac{1}{\hbar} \mu_B g B_z \sum_{\vec{l}} \tilde{S}_1^z. \quad (1.1)$$

Im Zeeman-Term ist μ_B das Bohr'sche Magneton und $g = \mu_z / s^z \mu_B$ das gyromagnetische Verhältnis.

Die Operatoren sind durch die Vertauschungsrelationen für Drehimpulse

$$[\tilde{S}_1^i, \tilde{S}_1^j] = i\hbar \epsilon_{ijk} \tilde{S}_1^k \delta_{\vec{l}\vec{l}'} \quad (1.2)$$

definiert und erfüllen die Eigenwertgleichungen

$$\begin{aligned}\tilde{S}^Z |sm\rangle &= \hbar m |sm\rangle \\ \tilde{S}^2 |sm\rangle &= \hbar^2 s(s+1) |sm\rangle .\end{aligned}\quad (1.3)$$

Die Eigenfunktionen $|sm\rangle$ werden nach der Spinquantenzahl s und der magnetischen Quantenzahl m klassifiziert.

Es ist üblich, die nicht-hermiteschen Operatoren $\tilde{S}^{\pm} = \tilde{S}^x \pm i\tilde{S}^y$ einzuführen. Aus den Gleichungen (1.2) folgen die Vertauschungsrelationen

$$\begin{aligned}[\tilde{S}_I^Z, \tilde{S}_I^{\pm}] &= \pm \hbar \tilde{S}_I^{\pm} \delta_{II'} , \\ [\tilde{S}_I^{\pm}, \tilde{S}_{I'}^{\mp}] &= 2\hbar \tilde{S}_I^Z \delta_{II'} ,\end{aligned}\quad (1.4)$$

und aus (1.3) erhält man die Eigenwertgleichungen für die neuen Operatoren:

$$\begin{aligned}\tilde{S}^+ |sm\rangle &= \hbar \sqrt{(s-m)(s+m+1)} |s(m+1)\rangle \\ \tilde{S}^- |sm\rangle &= \hbar \sqrt{(s-m+1)(s+m)} |s(m-1)\rangle .\end{aligned}\quad (1.5)$$

$\tilde{S}^+$ und $\tilde{S}^-$ erhöhen bzw. erniedrigen die magnetische Quantenzahl um eine Einheit und werden deshalb oft Spinumklappoperatoren genannt.

Das Produkt $\tilde{S}_I \cdot \tilde{S}_{I'}$ im Hamiltonoperator kann nun umgeschrieben werden:

$$\tilde{S}_I \cdot \tilde{S}_{I'} = \tilde{S}_I^+ \tilde{S}_{I'}^+ + \hbar \tilde{S}_I^Z \delta_{II'} + \tilde{S}_I^- \tilde{S}_{I'}^- . \quad (1.6)$$

Damit geht die Gleichung (1.1) über in

$$\tilde{H} = - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_{\vec{\ell} + \vec{\ell}'} J(\vec{\ell} - \vec{\ell}') (\tilde{S}_I^+ \tilde{S}_{I'}^+ + \tilde{S}_I^- \tilde{S}_{I'}^-) - \frac{1}{\hbar} \mu_B g B_z \sum_{\vec{\ell}} \tilde{S}_I^Z . \quad (1.7)$$

Um die Eigenwerte und die Eigenfunktionen dieses Operators zu finden, werden zwei verschiedene Wege beschritten. Einmal können die Eigenfunktionen für den Grundzustand und den ersten angeregten Zustand direkt angegeben und damit die Energieeigenwerte berechnet werden. Zum anderen wird der Hamiltonoperator diagonalisiert und auf diese Weise das Energiespektrum erhalten. Die erste Methode geht auf F. Bloch /3/ zurück, während die zweite wesentlich durch die Arbeit von Holstein und Primakoff /4/ beeinflusst wurde.

1.1. Die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators

Der Zustand $|0\rangle = \prod_{\vec{l}} |\uparrow\uparrow\rangle_{\vec{l}}$, in dem alle Spins parallel zueinander und zum äußeren Magnetfeld gerichtet sind, ist ein Eigenzustand des Hamiltonoperators in Gleichung (1.7). Das läßt sich mit Hilfe der Gleichungen (1.3) und (1.5) leicht nachrechnen. Das Glied $\tilde{S}_{\vec{l}}^+ \tilde{S}_{\vec{l}'}^+$, gibt keinen Beitrag, weil nach (1.5) $\tilde{S}^+ |\uparrow\uparrow\rangle = 0$ gilt. Für den zugehörigen Eigenwert findet man:

$$E_0 = -\frac{1}{2} s^2 \sum_{\vec{l}, \vec{l}'} J(\vec{l} - \vec{l}') - \mu_B g B_z N s.$$

Das erste Glied kann noch umgeformt werden. Dazu wird bei festem $\vec{l}$ über $\vec{l}'$ summiert. Mit periodischen Randbedingungen ergibt sich für jeden der N Gitterpunkte dieselbe Summe, so daß man endgültig erhält:

$$E_0 = -\frac{Ns^2}{2} \sum_{\vec{l}} J(\vec{l}) - Ns \mu_B g B_z. \quad (1.8)$$

Um nicht stets das Glied $\vec{l}=0$ in den Gittersummen über $J(\vec{l})$ ausschließen zu müssen, wurde hier für das Folgende $J(0)=0$ definiert. Der Zustand $|0\rangle$ wird sich als der Grundzustand des Ferromagneten herausstellen.

Der Zustand $|\vec{l}\rangle$, bei dem am Ort $\vec{l}$ die magnetische Quantenzahl um eine Einheit vermindert ist, kann durch die Funktion $|s(s-1)\rangle_{\vec{l}} \prod_{\vec{l} \neq \vec{l}'} |\uparrow\uparrow\rangle_{\vec{l}'}$, beschrieben werden. Wegen (1.5) ist dies, bis auf einen Faktor, äquivalent mit $\tilde{S}_{\vec{l}}^- |0\rangle$. Dieser Zustand ist jedoch kein Eigenzustand von $\tilde{H}$, weil er nicht invariant gegenüber Translationen ist. Dagegen ist die Blochfunktion

$$|\vec{k}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2sN}} \sum_{\vec{l}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{l}) \tilde{S}_{\vec{l}}^- |0\rangle, \quad (1.9)$$

als eine translationsinvariante Linearkombination von Zuständen $\tilde{S}_{\vec{l}}^- |0\rangle$, eine Eigenfunktion von $\tilde{H}$. Der Faktor vor der Summe wird zur Normierung eingeführt. Zur Lösung der Eigenwertgleichung $\tilde{H}|\vec{k}\rangle = E|\vec{k}\rangle$ geht man zur Fouriertransformierten $I(\vec{k})$ von $J(\vec{l})$ über, definiert durch die Gleichungen

$$J(\vec{l}) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{l}) I(\vec{k}) \quad I(\vec{k}) = \sum_{\vec{l}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{l}) J(\vec{l}) \quad (1.10)$$

und berücksichtigt Gittersummen der Art

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{l}} \exp(i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{l}) = \delta_{\vec{k}\vec{k}'}, \quad \frac{1}{N} \sum_{\vec{l}} \exp(-i\vec{k} \cdot (\vec{l}-\vec{l}')) = \delta_{\vec{l}\vec{l}'}. \quad (1.11)$$

Da das Austauschintegral nur vom Betrag von $\vec{l}$ abhängt, haben die Fouriertransformierten die Eigenschaft $I(\vec{k}) = I(-\vec{k})$, das heißt sie sind reell. Man findet für den Eigenwert des Operators (1.7) zum Zustand $|\vec{k}\rangle$:

$$\tilde{H}|\vec{k}\rangle = \left\{ E_0 + s[I(0)-I(\vec{k})] + \mu_B g B_Z \right\} |\vec{k}\rangle. \quad (1.12)$$

Da $s[I(0)-I(\vec{k})] = s \sum_{\vec{l}} J(|\vec{l}|) [1 - \cos(\vec{k} \cdot \vec{l})]$ für alle $\vec{k}$ -Werte größer oder gleich Null ist, ist $|\vec{k}\rangle$ ein angeregter Zustand mit der Anregungsenergie

$$E_{\vec{k}} = s[I(0)-I(\vec{k})] + \mu_B g B_Z \quad (1.13)$$

und E_0 und $|0\rangle$ sind Energie und Eigenvektor des Grundzustandes. Nach Gleichung (1.9) stellt $|\vec{k}\rangle$ eine räumliche Welle von Spinanregungen mit der Frequenz $\omega_{\vec{k}} = E_{\vec{k}}/\hbar$ dar. Die Energieeinheit $E_{\vec{k}}$ für $B_Z=0$ heißt Magnon.

1.2. Die Holstein-Primakoff-Transformation

Die Energieeigenwerte (1.8) und (1.13) ergeben sich sofort, wenn es gelingt, den Hamiltonoperator zu diagonalisieren. Das Folgende geht auf Holstein und Primakoff /4/ zurück und wird hier erläutert, weil es bei einem Antiferromagneten nicht möglich ist, die Wellenfunktionen von Grund- und angeregtem Zustand wie in 1.1. direkt anzugeben, so daß das übliche Verfahren die Diagonalisierung, ähnlich wie unten, ist.

In Gleichung (1.5) kann man statt der magnetischen Quantenzahl m eine neue einführen, die die Zahl n der umgeklappten Spins am Ort $\vec{l}$ angibt: $n_{\vec{l}} = s - m_{\vec{l}}$. Während m von s bis $-s$ läuft, liegt der Wertebereich von n zwischen 0 und $2s$. In der neuen Quantenzahl geschrieben lautet (1.5):

$$\begin{aligned} \tilde{S}^+ |sn\rangle &= \hbar \sqrt{2s} \sqrt{n(1 - \frac{n-1}{2s})} |s(n-1)\rangle \\ \tilde{S}^- |sn\rangle &= \hbar \sqrt{2s} \sqrt{(n+1)(1 - \frac{n}{2s})} |s(n+1)\rangle \end{aligned} \quad (1.14)$$

Führt man zwei neue Operatoren $\tilde{a}_1$ und $\tilde{a}_1^+$ ein, die der Nebenbedingung $[\tilde{a}_1, \tilde{a}_1^+] = \delta_{11}$, genügen, kann man (1.14) als Operatorgleichung interpretieren:

$$\begin{aligned}\tilde{S}^+ |sn\rangle &= \hbar \sqrt{2s} \left(1 - \frac{\tilde{n}}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} \tilde{a} |sn\rangle \\ \tilde{S}^- |sn\rangle &= \hbar \sqrt{2s} \tilde{a}^+ \left(1 - \frac{\tilde{n}}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} |sn\rangle,\end{aligned}\tag{1.15}$$

wobei $\tilde{n} = \tilde{a}^+ \tilde{a}$ der Besetzungszahloperator ist. Die Gleichungen (1.15) stellen die Holstein-Primakoff-Transformation dar, zu denen als dritte Gleichung

$$\tilde{S}^z |sn\rangle = \hbar (s - \tilde{n}) |sn\rangle\tag{1.15}$$

gehört, die man aus der Identität

$$\tilde{S}^2 = \frac{1}{2} (\tilde{S}^+ \tilde{S}^- + \tilde{S}^- \tilde{S}^+) + (\tilde{S}^z)^2 = \hbar^2 s(s+1)$$

erhält. Mit Hilfe der Kommutatoren $[\tilde{a}, \tilde{n}] = \tilde{a}$ und $[\tilde{n}, \tilde{a}^+] = \tilde{a}^+$ kann die Wirkungsweise der Operatoren $\tilde{a}$ und $\tilde{a}^+$ auf die Eigenfunktionen $|sm\rangle$ der Spinoperatoren festgestellt werden:

$$\tilde{a} |sm\rangle = \sqrt{s-m} |s(m+1)\rangle \quad \tilde{a}^+ |sm\rangle = \sqrt{s-m+1} |s(m-1)\rangle. \tag{1.16}$$

Die Operatoren $\tilde{a}_1$ und $\tilde{a}_1^+$ vernichten bzw. erzeugen einen umgeklappten Spin am Ort $\vec{1}$. Aus der dritten Gleichung von (1.15) folgt, daß die Funktionen $|sm\rangle$ Eigenfunktionen des Teilchenzahloperators $\tilde{n}$ sind. Außer diesen $2s+1$ Eigenlösungen der Spinoperatoren hat $\tilde{n}$ jedoch noch abzählbar unendlich viele Eigenlösungen $|n\rangle$ mit $n \geq (2s+1)$. Diese würden zu den physikalisch unrealistischen magnetischen Quantenzahlen $m < -(s+1)$ führen. Die Verbindung der beiden Räume stellt der Operator $\tilde{a}^+$ her, denn nach (1.16) gilt

$$\tilde{a}^+ |s(-s)\rangle = \sqrt{2s+1} |s(-s-1)\rangle.$$

In der Transformation (1.15) ergibt sich daraus keine Schwierigkeit, weil der Teilchenzahloperator in der Gleichung für $\tilde{S}^-$ dafür sorgt, daß $\tilde{S}^- |s(m=-s)\rangle$ verschwindet, und somit die Räume der

physikalischen und unphysikalischen Funktionen getrennt sind. Die Transformation auf die Boseoperatoren $\tilde{a}$ und $\tilde{a}^+$ ist nicht-linear, so daß man im allgemeinen die Wurzel in (1.15) entwickelt, und die Entwicklung an einer geeigneten Stelle abbricht. Dabei geht aber die Trennung der beiden Eigenräume verloren. Behält man zum Beispiel von der Entwicklung nur das konstante Glied, wird $\tilde{S}^-$ proportional zu $\tilde{a}^+$, so daß $\tilde{S}^-|s, -s\rangle$, mit $\tilde{S}^-$ nach Boseoperatoren entwickelt, nicht mehr verschwindet, wie es für einen Spinoperator sein sollte. Außerdem folgt in diesem Fall aus der Vertauschungsrelation $[\tilde{a}_i^-, \tilde{a}_i^+] = \delta_{ii}$, der Kommutator $[\tilde{S}_i^+, \tilde{S}_i^-] = \hbar^2 2s \delta_{ii}$, für die Spinoperatoren im Gegensatz zu (1.4). Diese Beziehung gilt nur dann, wenn $m \approx s$ oder $n \ll 2s$ ist, d.h. bei tiefen Temperaturen oder großen Spinquantenzahlen. Deshalb ist die Holstein-Primakoff-Transformation und anschließende Entwicklung der Wurzel keine gute Näherung für Systeme mit $s = 1/2$. In diesem Fall führt man die Transformation zu Pauli-Operatoren durch, die durch die Gleichungen

$$\tilde{S}_i^+ = \hbar \tilde{b}_i^- \quad \tilde{S}_i^- = \hbar \tilde{b}_i^+ \quad \tilde{S}_i^z = \hbar (1 - 2\tilde{n}_i) \quad (1.17)$$

definiert sind. Dabei ist $\tilde{n} = \tilde{b}^+ \tilde{b}$ der Teilchenzahloperator. Die Operatoren $\tilde{b}_i^-$ und $\tilde{b}_i^+$ genügen den Vertauschungsrelationen

$$[\tilde{b}_i^+, \tilde{b}_i^+] = 0 \quad [\tilde{b}_i^-, \tilde{b}_i^-] = 0 \quad [\tilde{b}_i^-, \tilde{b}_i^+] = (1 - 2\tilde{n}_i) \delta_{ii}.$$

Wegen des letzten Kommutators sind die $\tilde{b}$'s, anders als die $\tilde{a}$'s, keine Boseoperatoren.

Behält man von der Entwicklung der Wurzel bei tiefen Temperaturen nur das konstante Glied und führt die fouriertransformierten Operatoren $\tilde{a}_k$ und $\tilde{a}_k^+$

$$\tilde{a}_k = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{l}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{l}) \tilde{a}_{\vec{l}} \quad \tilde{a}_k^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{l}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{l}) \tilde{a}_{\vec{l}}^+ \quad (1.18)$$

ein, die den Vertauschungsrelationen

$$[\tilde{a}_k^+, \tilde{a}_k^+] = 0 \quad [\tilde{a}_k^-, \tilde{a}_k^-] = 0 \quad [\tilde{a}_k^-, \tilde{a}_k^+] = \delta_{kk'}$$

genügen, so läßt sich der Hamiltonoperator diagonalisieren und

man wird auf das Spinwellenkonzept geführt. In dieser Näherung lautet die Holstein-Primakoff-Transformation:

$$\begin{aligned}\tilde{S}_1^+ &= \sqrt{\frac{2s}{N}} \sum_{\vec{k}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{l}) \tilde{a}_{\vec{k}} \\ \tilde{S}_1^- &= \sqrt{\frac{2s}{N}} \sum_{\vec{k}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{l}) \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \\ \tilde{S}_1^z &= \tilde{n}_s - \frac{\hbar}{N} \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \exp(i(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{l}) \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'}.\end{aligned}\quad (1.19)$$

Die letzte Gleichung ist exakt.

Die Fouriertransformation für die Paulioperatoren ist wie in (1.18) definiert. Berücksichtigt man bei der Transformation des Hamiltonoperators nur quadratische Glieder in den Operatoren $\tilde{a}$ bzw. $\tilde{b}$, erhält man für (1.7):

$$\tilde{H} = E_0 + \sum_{\vec{k}} E_{\vec{k}} \tilde{n}_{\vec{k}} \quad (1.20)$$

mit E_0 und $E_{\vec{k}}$ aus (1.8) bzw. (1.13). Der Teilchenzahloperator $\tilde{n}_{\vec{k}}$ ist in den beiden Fällen $s = 1/2$ und $s > 1/2$ entsprechend zu interpretieren. Die Holstein-Primakoff-Transformation, bzw. die Pauli-Transformation für $s = 1/2$, führt somit in niedrigster Näherung zu einem Hamiltonoperator, der ein System nicht-wechselwirkender Teilchen in einem leeren Gitter beschreibt. Die Teilchensind die in 1.1. eingeführten Spinwellen $|\vec{k}\rangle$.

Führt man die Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation bis zu Gliedern proportional zu $\tilde{n}_{\vec{l}}$ durch und faßt im transformierten Hamiltonoperator alle Glieder vierfacher Produkte von Operatoren zusammen, so erhält man den Magnonen-Wechselwirkungsoperator

$$\tilde{H}_4 = \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}''} [I(\vec{k} - \vec{k}') + I(\vec{k}'') - 2I(\vec{k})] \tilde{a}_{\vec{k}'' + \vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}' - \vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{k}''} \quad (1.21)$$

Die ersten beiden Glieder in der Klammer rühren von $\tilde{S}_1^- \tilde{S}_1^+$, und das dritte von $\tilde{S}_1^z \tilde{S}_1^z$, her. Im Fall $s = 1/2$ und Transformation nach (1.17) erhält man nur das dritte Glied. Im folgenden wird nur noch der Fall $s > 1/2$ betrachtet. Die Konsequenzen, die sich aus dem Auftreten von $\tilde{H}_4$ ergeben, werden in 1.4. besprochen. Zunächst soll die Spinwellendispersion, wie sie sich aus dem Bisherigen ergibt, für zwei einfache Fälle angegeben werden.

1.3. Spinwellendispersion für zwei Spezialfälle

In den folgenden Beispielen sei das Austauschintegral nur zwischen nächsten Nachbarn von Null verschieden.

a) Einfacher kubischer Ferromagnet.

Die Vektoren zu den 6 nächsten Nachbarn werden mit $\vec{\delta}$ bezeichnet. Aus (1.10) folgt unter Berücksichtigung von $I(-\vec{k}) = I(\vec{k})$:

$$I(\vec{k}) = J \sum_{\vec{\delta}} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta})$$

und damit aus (1.13) für die Anregungsenergie:

$$E_{\vec{k}} = 6Js \left(1 - \frac{1}{6} \sum_{\vec{\delta}} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta})\right) + \mu_B g B_z .$$

b) Lineare Kette.

Hier ist die Anzahl der nächsten Nachbarn 2. Ersetzt man deshalb in dem obigen Ausdruck für $E_{\vec{k}}$ die Zahl 6 durch 2 und berücksichtigt, daß $\vec{k}$ nur in Richtung der Kette weisen kann, ergibt sich:

$$E_{\vec{k}} = 2Js(1 - \cos(ka)) + \mu_B g B_z ,$$

wobei a ein Gitterabstand ist.

In beiden Fällen erhält man in langwelliger Näherung, d.h. für $ka \ll 1$, und mit $B_z = 0$:

$$\hbar \omega_{\vec{k}} = \frac{z}{2} Js (ka)^2 ,$$

wobei z die Zahl der nächsten Nachbarn ist. Zum Vergleich dazu lautet die entsprechende Gleichung für eine elastische Kette gleichartiger Atome mit Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn:

$$\omega_k^2 = \frac{2f}{m} (1 - \cos(ka)),$$

wobei f die Kraftkonstante und m die Masse der Atome bezeichnen. Im Grenzfall langer Wellen erhält man hier:

$$\omega_k^2 = \frac{f}{m} (ka)^2 .$$

Bei langwelligten Phononen erhält man einen linearen Zusammenhang zwischen Energie und Wellenzahl, im Fall der Spinwellen in einem Ferromagneten einen quadratischen.

1.4. Renormierung der Spinwellenenergie.

Zweizeitige, temperaturabhängige Green'sche Funktionen

In 1.2. wurde bereits auf die Schwierigkeiten hingewiesen, die sich durch die Einführung der neuen Operatoren $\tilde{a}$ und $\tilde{a}^+$ ergeben. Es wurde die Bedingung angegeben, für die eine Entwicklung der Wurzel und Abbruch der Reihe nur sinnvoll sein kann. Setzt man die Entwicklung der Spinoperatoren in den Hamiltonoperator ein, so zerfällt er in einen quadratischen und in einen nicht-quadratischen Anteil in den neuen Operatoren. Es liegt nahe, den nicht-quadratischen Anteil als Störglied im Sinne der Störungsrechnung aufzufassen. Eine solche Betrachtungsweise ist aber nur möglich, wenn die Störenergie klein im Vergleich zur ungestörten Energie ist. Das ist im vorliegenden Fall nicht von vornherein klar. Es ist tatsächlich so, daß für langwellige Magnonen die Diagonalglieder des Störoperators teilweise von den nicht-diagonalen Gliedern kompensiert werden, siehe Dyson /5/, so daß die unten erhaltenen Ergebnisse für diesen Fall nicht anwendbar sind. Für kurzwellige Spinwellen werden jedoch Ergebnisse gefunden, die gut mit den Experimenten übereinstimmen, wie in II.3 dieser Arbeit gezeigt wird.

Dyson /5/ untersuchte die Wechselwirkung der Spinwellen in einem einfachen, kubischen Ferromagneten, ohne von der Holstein-Primakoff-Transformation Gebrauch zu machen. Er konstruierte, ausgehend vom Einmagnonenzustand $\tilde{S}_K^-|0\rangle$, Wellenfunktionen für Zustände mit mehr als einer angeregten Spinwelle. Diese Wellenfunktionen sind weder normiert noch orthogonal. Außerdem ist der Satz von Quantenzahlen hochgradig redundant, so daß sich große Schwierigkeiten bei der Berechnung der Zustandssumme ergaben. Die Nichtorthogonalität der Wellenfunktionen führt zu einer Wechselwirkung, die Dyson kinematische Wechselwirkung nannte. Die physikalische Ursache liegt darin, daß der Spin eines Ions um nicht mehr als 2s Einheiten umgeklappt sein kann. Dieselbe kinematische Wechselwirkung tritt in der Holstein-Primakoff-Transformation auf, wenn die Entwicklung der Wurzel abgebrochen wird. Dyson zeigte, daß diese Wechselwirkung bei tiefen Temperaturen vernachlässigt und das reale System näherungsweise durch einen Hamiltonoperator für wechselwirkende, ideale Spinwellen

beschrieben werden kann. Zittartz /6/ kommt auf einem anderen Weg zu demselben Ergebnis.

Vom nicht-quadratischen Anteil der Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation wird im folgenden $\tilde{H}_4$ als Hauptterm aufgefaßt und als kleine Störung betrachtet. In dieser Näherung lautet der gesamte Hamiltonoperator

$$\tilde{H} = E_0 + \tilde{H}_2 + \tilde{H}_4 \quad (1.22)$$

mit $\tilde{H}_2 = \sum_{\vec{k}} E_{\vec{k}} \tilde{n}_{\vec{k}}$ und $\tilde{H}_4$ aus Gleichung (1.21), wobei hier und im folgenden $B_z=0$ gesetzt wird. $\tilde{H}_4$ beschreibt die Vernichtung und Erzeugung von je zwei Spinwellen mit den Energien $E_{\vec{k}'}$ und $E_{\vec{k}''}$ bzw. $E_{\vec{k}'-\vec{k}}$ und $E_{\vec{k}''+\vec{k}}$ unter Wellenvektorerhaltung, oder anders ausgedrückt, die Streuung zweier Magnonen aus den Zuständen $\vec{k}'$ und $\vec{k}''$ in die Zustände $\vec{k}'-\vec{k}$ und $\vec{k}''+\vec{k}$. Die Diagonalglieder von $\tilde{H}_4$ haben die Form $\sum_{\vec{k}} \tilde{n}_{\vec{k}} \sum_{\vec{k}'} I(\vec{k}, \vec{k}') \tilde{n}_{\vec{k}'}$, wobei $I(\vec{k}, \vec{k}')$ eine Funktion der Fouriertransformierten des Austauschintegrals ist. Diese Diagonalglieder kann man mit $\tilde{H}_2$ zusammenfassen:

$$\tilde{H} = E_0 + \sum_{\vec{k}} [E_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}'} I(\vec{k}, \vec{k}') \tilde{n}_{\vec{k}'}] \tilde{n}_{\vec{k}} + \tilde{H}_4', \quad (1.23)$$

wobei $\tilde{H}_4'$ nur noch Nichtdiagonalglieder enthält. An dieser Schreibweise erkennt man, daß die Diagonalglieder von $\tilde{H}_4$ zu einer Renormierung der Spinwellenenergie führen. $\tilde{H}_4$ gibt nur dann einen von Null verschiedenen Beitrag, wenn mindestens zwei Spinwellen im Gitter vorhanden sind, und der Beitrag wird umso größer, je größer die Besetzungszahlen $n_{\vec{k}}$ sind. Deshalb ist die Korrektur temperaturabhängig.

In diesem Abschnitt wird die Spinwellenrenormierung mit Hilfe von zweizeitigen, temperaturabhängigen Green'schen Funktionen behandelt, um an diesem einfachen Beispiel den Gebrauch dieser Funktionen zu zeigen.

Zweizeitige, temperaturabhängige Green'sche Funktionen werden eingeführt, um Korrelationsfunktionen zu berechnen. Korrelationsfunktionen sind statistische Mittelwerte der Art

$$F_{\tilde{A}\tilde{B}}(t, t') = \langle \tilde{A}(t) \tilde{B}(t') \rangle = \text{Spur}(\tilde{\rho} \tilde{A}(t) \tilde{B}(t')).$$

Der statistische Operator $\tilde{\rho}$ ist für eine großkanonische Gesamtheit durch

$$\tilde{\rho} = \frac{1}{\mathcal{Z}} \exp(-\beta(\tilde{H} - \mu\tilde{N})) \quad \beta = \frac{1}{kT}$$

gegeben. Die Operatoren $\tilde{H}$ und $\tilde{N}$ sind Hamiltonoperator und Gesamtteilchenzahloperator, μ ist das chemische Potential und $\mathcal{Z}$ die große Zustandssumme

$$\mathcal{Z} = \text{Spur}(\exp(-\beta(\tilde{H} - \mu\tilde{N}))).$$

Es werden drei Arten von zweizeitigen, temperaturabhängigen Green'schen Funktionen definiert,

$$\begin{aligned} G_{\tilde{A}\tilde{B}}^r(t, t') &= \langle\langle \tilde{A}(t); \tilde{B}(t') \rangle\rangle^r = -i \Theta(t-t') \langle [\tilde{A}(t), \tilde{B}(t')] \rangle \\ G_{\tilde{A}\tilde{B}}^a(t, t') &= \langle\langle \tilde{A}(t); \tilde{B}(t') \rangle\rangle^a = +i \Theta(t'-t) \langle [\tilde{A}(t), \tilde{B}(t')] \rangle \\ G^k(t, t') &= -i \langle \tilde{P}(\tilde{A}(t)\tilde{B}(t')) \rangle, \end{aligned} \quad (1.24)$$

retardierte (r), avancierte (a) und kausale (k) Green'sche Funktionen. $\Theta(\tau) = \int_0^\tau \delta(t) dt$ ist die Sprungfunktion und $\tilde{P}$ der Dyson'sche Zeitordnungsoperator. $[\tilde{A}, \tilde{B}]_\eta = \tilde{A}\tilde{B} - \eta\tilde{B}\tilde{A}$ ist für $\eta = \pm 1$ der Kommutator bzw. Antikommutator. Da nach 1.2. die Spinwellenoperatoren in der Holstein-Primakoff-Transformation Bosecharakter haben, wird im folgenden $\eta = 1$ gesetzt. Zur Theorie der Green'schen Funktionen und ihrer Anwendung in der statistischen Physik wird zum Beispiel auf /7/ verwiesen.

Zwischen der Green'schen Funktion $G_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega)$ und der Fouriertransformierten $F_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega)$ der Korrelationsfunktion $F_{\tilde{A}\tilde{B}}(t, t')$, die oft als Spektraldichte bezeichnet wird, besteht folgender fundamentaler Zusammenhang, siehe beispielsweise Zubarev /8/:

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} [G_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega + i\epsilon) - G_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega - i\epsilon)] = -i [1 - \exp(-\beta\hbar\omega)] F_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega), \quad (1.25)$$

ω ist hier reell.

$G_{\tilde{A}\tilde{B}}(z)$, z komplex, ist die erzeugende Greenfunktion, die in der oberen bzw. unteren Halbebene mit der bezüglich $\tau = t-t'$ gemäß

$$G^{r,a}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G^{r,a}(\tau, 0) \exp(i\omega\tau) d\tau$$

fouriertransformierten retardierten bzw. avancierten Green'schen Funktion übereinstimmt.

Die Green'schen Funktionen können aus Bewegungsgleichungen bestimmt werden:

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \tilde{A}(t); \tilde{B}(t') \rangle\rangle = -i \delta(t-t') \langle [\tilde{A}(t), \tilde{B}(t)] \rangle + \langle\langle \frac{\partial \tilde{A}(t)}{\partial t}; \tilde{B}(t') \rangle\rangle.$$

In der Heisenbergdarstellung gilt

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \tilde{A}(t) = [\tilde{A}(t), \tilde{H}],$$

so daß diese Gleichung übergeht in:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \tilde{A}(t); \tilde{B}(t') \rangle\rangle = \hbar \delta(t-t') \langle [\tilde{A}(t), \tilde{B}(t)] \rangle + \langle\langle \tilde{A}(t), \tilde{H} \rangle\rangle; \tilde{B}(t') \rangle\rangle. (1.26)$$

Da (1.26) sowohl für G^a als auch für G^r gilt, wird der Index weggelassen. Im allgemeinen ist $\langle\langle [\tilde{A}(t), \tilde{H}]; \tilde{B}(t') \rangle\rangle$ eine Green'sche Funktion von höherer Ordnung als $\langle\langle \tilde{A}(t); \tilde{B}(t') \rangle\rangle$, siehe z.B. unten, für die man wieder (1.26) aufschreiben kann, so daß man eine Kette von Differentialgleichungen erhält. Kann man durch eine Näherung auf der rechten Seite dieser Gleichung die Greenfunktion von links reproduzieren, so kann man durch Fouriertransformation zu einer algebraischen Gleichung in

$$\langle\langle \tilde{A}; \tilde{B} \rangle\rangle(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \langle\langle \tilde{A}(\tau); \tilde{B}(0) \rangle\rangle \exp(i\omega\tau) d\tau$$

übergehen.

1.4.1. Das Anregungsspektrum

Im folgenden wird die Korrektur zur Spinwellenenergie auf Grund der Wechselwirkung der Spinwellen für einen Ferromagneten berechnet. Ausgangspunkt ist die Korrelationsfunktion $\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+(t) \tilde{a}_{\vec{k}}(t') \rangle$, die für $t=t'$ und für $\vec{k}=\vec{k}'$ die mittlere Besetzungszahl im Spinwellenzustand $\vec{k}$ angibt. Um dieses Problem zu lösen, muß der Kommutator $[\tilde{a}_{\vec{k}}^+(t), \tilde{H}]$ berechnet werden; der Hamiltonoperator ist auch in der Heisenberg-Darstellung unabhängig von t . Wegen

$$[\tilde{a}_{\vec{k}}^+(t), \tilde{H}] = \exp\left(\frac{i}{\hbar} \tilde{H} t\right) [\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{H}] \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \tilde{H} t\right)$$

genügt es, $[\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{H}]$ zu berechnen. $\tilde{H}$ ist nach (1.20) und (1.21) durch folgenden Ausdruck gegeben:

$$\tilde{H} = E_0 + \sum_{\vec{q}} E(\vec{q}) \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}, \vec{r}} E(\vec{p}-\vec{q}, \vec{r}, \vec{p}) \tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{r}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{a}_{\vec{r}}, \quad (1.27)$$

wobei zur Abkürzung

$$E(\vec{p}-\vec{q}, \vec{r}, \vec{p}) = I(\vec{p}-\vec{q}) + I(\vec{r}) - 2I(\vec{p}) \quad (1.28)$$

gesetzt wurde. Um übersichtlichere Ausdrücke zu erhalten, werden die Zeitargumente in den Green'schen Funktionen im folgenden oft weggelassen. Es ist klar, daß die Operatoren links vom Strichpunkt von t und rechts davon von t' abhängen. Mit Hilfe der Vertauschungsrelationen erhält man das Ergebnis

$$[\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{H}] = -E_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} [E(\vec{p}-\vec{q}, \vec{k}, \vec{p}) + E(\vec{p}+\vec{k}, \vec{q}, \vec{p})] \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}. \quad (1.29)$$

Damit lautet die Bewegungsgleichung (1.26)

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle &= \hbar \delta(t-t') \langle [\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{a}_{\vec{k}}] \rangle - E(\vec{k}) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle - \\ &- \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} [E(\vec{p}-\vec{q}, \vec{k}, \vec{p}) + E(\vec{p}+\vec{k}, \vec{q}, \vec{p})] \langle \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle. \end{aligned} \quad (1.30)$$

Der Term $\tilde{H}_4$ im Hamiltonoperator führt also dazu, daß rechts in (1.30) Green'sche Funktionen auftreten, die dreifache Operatorprodukte zur selben Zeit enthalten. Stellt man für diese Zweiteilchen-Greenfunktion wieder die Bewegungsgleichung (1.26) auf, so muß man berücksichtigen, daß die Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation zu Gliedern im Hamiltonoperator führt, die in der Bewegungsgleichung für die Einteilchen-Green-

funktion Terme von gleicher Größenordnung ergeben. Man wird dabei auf Dreiteilchen-, und bei Fortsetzung des Verfahrens, auf Vielteilchen-Greenfunktionen geführt. Die Kette von Differentialgleichungen bricht nicht ab. Im folgenden wird in üblicher Weise ein Abbruch erzwungen, indem in der Zweiteilchen-Greenfunktion alle möglichen Kontraktionen von Operatoren, die sich auf denselben Zeitpunkt beziehen, gebildet werden. Es wird also gesetzt:

$$\langle \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle \approx \delta_{\vec{k}+\vec{p}, \vec{q}} \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \delta_{\vec{q}-\vec{p}, \vec{q}} \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle .$$

Damit geht (1.30) in dieser Näherung über in

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle &= -\hbar \delta(t-t') \delta_{\vec{k}\vec{k}} - E(\vec{k}) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{q}} \{ E(-\vec{k}, \vec{k}, \vec{q}-\vec{k}) + \\ &\quad + E(\vec{q}, \vec{q}, \vec{q}-\vec{k}) + E(-\vec{q}, \vec{k}, 0) + E(\vec{k}, \vec{q}, 0) \} \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle , \end{aligned} \quad (1.31)$$

In der geschweiften Klammer werden die Ausdrücke für die einzelnen Glieder aus (1.28) eingesetzt und man erhält dafür $4[I(\vec{q})-I(\vec{q}-\vec{k})] - \frac{4}{N} E(\vec{k})$. Mit der renormierten Spinwellenenergie

$$E_{\vec{k}}(T) = E_{\vec{k}} \left(1 - \frac{1}{Ns} \sum_{\vec{q}} \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle \right) + \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} [I(\vec{q}) - I(\vec{q}-\vec{k})] \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle , \quad (1.32)$$

die wegen der mittleren Besetzungszahl temperaturabhängig ist, findet man für die Gleichung (1.31) endgültig

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+(t); \tilde{a}_{\vec{k}}(t) \rangle = -\hbar \delta(t-t') \delta_{\vec{k}\vec{k}} - E_{\vec{k}}(T) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+(t); \tilde{a}_{\vec{k}}(t) \rangle . \quad (1.33)$$

Im Anhang wird für raumzentrierte (orthorhombische, tetragonale oder kubische) Metallionenuntergitter und Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn die folgende Identität bewiesen:

$$\sum_{\vec{q}} I(\vec{q}-\vec{k}) \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle = \frac{I(\vec{k})}{I(0)} \sum_{\vec{q}} I(\vec{q}) \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle .$$

Damit kann man (1.32) vereinfachen:

$$E_{\vec{k}}(T) = E(\vec{k}) \left[1 - \frac{1}{Ns \cdot I(0)} \sum_{\vec{q}} E(\vec{q}) \langle \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \rangle \right] . \quad (1.32a)$$

Es wird darauf hingewiesen, daß sich die Renormierung hier unabhängig von $\vec{k}$ ergibt, d.h. gleiches Verhalten von kurz- und langwelligeren Spinwellen vorhergesagt wird. Hierauf wird noch einmal eingegangen.

Nach Fouriertransformation erhält man statt der Differentialgleichung (1.33) die algebraische Gleichung

$$\hbar \omega \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}'} \rangle (\omega) = -\frac{\hbar}{2\pi} \delta_{\vec{k}\vec{k}'} - E_{\vec{k}}(T) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}'} \rangle (\omega) \quad , \quad (1.34)$$

aus der sofort folgt:

$$\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}'} \rangle (\omega) = -\frac{1}{2\pi} \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{\omega + E_{\vec{k}}(T)/\hbar} \quad . \quad (1.35)$$

Die Spektraldichte ergibt sich mit (1.25) und der Darstellung der δ -Funktion

$$\delta(x) = \frac{1}{2\pi i} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[\frac{1}{x - i\epsilon} - \frac{1}{x + i\epsilon} \right] \quad (1.36)$$

in der Form

$$F_{\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'}}(\omega) = -\delta_{\vec{k}\vec{k}'} \frac{\delta(\omega + E_{\vec{k}}(T)/\hbar)}{1 - \exp(-\beta \hbar \omega)} \quad . \quad (1.37)$$

Die Korrelationsfunktion $F_{\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'}}(\tau)$ ergibt sich daraus durch Rücktransformation:

$$F_{\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'}}(\tau) = -\delta_{\vec{k}\vec{k}'} \frac{\exp(iE_{\vec{k}}(T)\tau/\hbar)}{1 - \exp(\beta E_{\vec{k}}(T))} \quad . \quad (1.38)$$

Für $\tau=0$ und $\vec{k}=\vec{k}'$ erhält man die mittlere Besetzungszahl des Spinwellenzustandes $\vec{k}$ bei Berücksichtigung der Magnonenwechselwirkung:

$$\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle = \frac{1}{\exp(\beta E_{\vec{k}}(T)) - 1} \quad . \quad (1.39)$$

Man findet also eine Boseverteilungsfunktion mit der renormierten Energie $E_{\vec{k}}(T)$. Macht man nicht die Einschränkung $B_z = 0$, erhält man formal dasselbe Ergebnis, jedoch mit $E_{\vec{k}}(T)$ durch $E_{\vec{k}}(T) + \mu_B g B_z$ ersetzt. Um den physikalischen Hintergrund dieser Näherung etwas klarer hervortreten zu lassen, wird nochmals (1.23) betrachtet. Man kann die obigen Ergebnisse erhalten, wenn man in diesem Ausdruck $\tilde{H}_4 = 0$ setzt, was auf die Vernachlässigung der Dämpfung hin-

ausläuft, und in der eckigen Klammer den Operator $n_{\vec{k}}$ durch den thermischen Mittelwert $\langle \tilde{n}_{\vec{k}} \rangle$ ersetzt. Man betrachtet folglich eine Spinwelle in dem Feld aller sich im thermischen Gleichgewicht befindlichen Spinwellen, d.h. die Näherung ist einer Hartree-Fock-Näherung äquivalent. Diese Näherung führt zu einer Spinwellenrenormierung, die für raumzentrierte Gitter unabhängig von $\vec{k}$ ist. Sie kann deshalb nur solche Phasenübergänge beschreiben, bei denen die Energien aller Magnonen verschwinden. Tatsächlich ist es aber so, daß z.B. die AFMR-Frequenz eines Antiferromagneten, die der Energie des Magnons mit $\vec{k}=0$ entspricht, bei T_N verschwindet, während auch noch oberhalb von T_N Ramanstreuung an kurzwelligen Spinwellen zu beobachten ist. Bei der Übergangstemperatur T_C oder T_N verschwindet nur die langreichweitige Ordnung. Lines /9/ entwickelte eine Theorie, die diesen Schwierigkeiten Rechnung trägt, und die es gestattet, in die Gleichungen (1.32) und (1.35) $\vec{k}$ -abhängige Funktionen einzuführen.

2. Der antiferromagnetische Isolator

2.1. Der Hamiltonoperator

Der Antiferromagnet wird unter folgenden vereinfachenden Annahmen behandelt:

1. Der Kristall bestehe aus zwei gegeneinander versetzten Bravaisgittern mit entgegengesetzten Spinrichtungen, die mit $\vec{l}$ und $\vec{f}$ bezeichnet werden. Die Spinquantenzahlen der Ionen $\vec{l}$ und $\vec{f}$ seien gleich. Die Zahl der Elementarzellen ist N . Da jede Zelle ein Ion $\vec{l}$ und $\vec{f}$ enthält, ist die Zahl der Gitterpunkte jedes Untergitters N .
2. Die Bevorzugung einer Raumrichtung sei durch ein makroskopisches fiktives Feld B_A , das Anisotropiefeld, beschrieben. Die bevorzugte Raumrichtung sei die $\vec{z}$ -Richtung. Die Bezeichnung $\vec{l}$ und $\vec{f}$ ist so festgesetzt, daß im ausgerichteten Zustand die Spins des $\vec{l}$ -Gitters in die $\vec{z}$ - und des $\vec{f}$ -Gitters in die $-\vec{z}$ -Richtung weisen.

Die Austauschwechselwirkung wird nicht auf antiferromagnetische Nachbarn beschränkt, so daß der Hamiltonoperator mit einem äußeren Magnetfeld B_z in $\vec{z}$ -Richtung lautet:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & -\frac{1}{2N} \sum_{\vec{l}, \vec{f}} J(\vec{l}-\vec{f}) \vec{S}_{\vec{l}} \vec{S}_{\vec{f}} - \frac{1}{2N} \sum_{\vec{l}, \vec{l}'} L(\vec{l}-\vec{l}') \vec{S}_{\vec{l}} \vec{S}_{\vec{l}'} - \frac{1}{2N} \sum_{\vec{f}, \vec{f}'} F(\vec{f}-\vec{f}') \vec{S}_{\vec{f}} \vec{S}_{\vec{f}'} - \\ & - \frac{\mu_B g B_A}{N} \left[\sum_{\vec{l}} \tilde{S}_{\vec{l}}^z - \sum_{\vec{f}} \tilde{S}_{\vec{f}}^z \right] - \frac{\mu_B g B_z}{N} \left[\sum_{\vec{l}} \tilde{S}_{\vec{l}}^z + \sum_{\vec{f}} \tilde{S}_{\vec{f}}^z \right]. \end{aligned} \quad (2.1)$$

Der gesamte Hamiltonoperator zerfällt also in einen antiferromagnetischen Teil, der die Wechselwirkung zwischen den Untergittern berücksichtigt, in zwei ferromagnetische Anteile für die Wechselwirkung innerhalb je eines Untergitters und verschiedene Zeemanglieder.

$J(\vec{l}-\vec{f})$ ist das Austauschintegral zwischen zwei Ionen auf verschiedenen Untergittern im Abstand $|\vec{l}-\vec{f}|$ und ist negativ. $L(\vec{l}-\vec{l}')$ und $F(\vec{f}-\vec{f}')$ sind die Austauschintegrale für die Wechselwirkung innerhalb eines Untergitters. Da die Untergitter gleichberechtigt sind, gilt $L(\vec{s}) = F(\vec{s})$. Außerdem wurde in (2.1) $L(\vec{s}=0)=0$ definiert.

2.2 Diagonalisierung des antiferromagnetischen Hamiltonoperators

Die Eigenfunktionen des antiferromagnetischen Hamiltonoperators lassen sich nicht so einfach wie beim Ferromagneten finden. Es stellt sich z.B. heraus, daß der vollständig ausgerichtete Zustand, der Néel-Zustand, kein Eigenzustand des Hamiltonoperators und damit auch nicht der Grundzustand ist. Man ermittelt deshalb das Eigenwertspektrum durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators. Man führt dazu wie in 1.2 durch die Holstein-Primakoff-Transformation für jedes Untergitter zwei unabhängige Operatoren $\tilde{a}_I, \tilde{a}_I^+$ bzw. $\tilde{b}_F, \tilde{b}_F^+$ ein, die den Vertauschungsregeln

$$[\tilde{a}_I, \tilde{a}_I^+] = \delta_{II'}, \quad [\tilde{b}_F, \tilde{b}_F^+] = \delta_{FF'}$$

genügen, während alle anderen Kommutatoren verschwinden. Die Transformationsgleichungen lauten:

$$\begin{aligned} \tilde{S}_I^+ &= \sqrt{2s} \hbar \left(1 - \frac{\tilde{n}_I}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} \tilde{a}_I & \tilde{S}_F^+ &= \sqrt{2s} \hbar \tilde{b}_F^+ \left(1 - \frac{\tilde{n}_F}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} \\ \tilde{S}_I^- &= \sqrt{2s} \hbar \tilde{a}_I^+ \left(1 - \frac{\tilde{n}_I}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} & \tilde{S}_F^- &= \sqrt{2s} \hbar \left(1 - \frac{\tilde{n}_F}{2s}\right)^{\frac{1}{2}} \tilde{b}_F \\ \tilde{S}_I^Z &= \hbar (s - \tilde{n}_I) & \tilde{S}_F^Z &= -\hbar (s - \tilde{n}_F) \end{aligned} \quad (2.2)$$

Die Vektoren $\vec{I}$ und $\vec{F}$ enthalten nichtprimitive Translationen. Es gilt z.B. $\vec{r}_I = \vec{R} + \vec{\tau}_I$ und das Analoge für das andere Untergitter, wobei der Vektor $\vec{R}$ die Elementarzelle festlegt und $\vec{\tau}$ das entsprechende Ion in der Elementarzelle. Mit $\Delta\vec{\tau} = \vec{\tau}_I - \vec{\tau}_F$ sind die Fouriertransformationen folgendermaßen erklärt:

$$\begin{aligned} A(\vec{I} - \vec{F}) &= A(\vec{R} + \Delta\vec{\tau}) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \exp(-i\vec{k}(\vec{R} + \Delta\vec{\tau})) A(\vec{k}) \\ A(\vec{k}) &= \sum_{\vec{R}} \exp(i\vec{k}(\vec{R} + \Delta\vec{\tau})) A(\vec{R} + \Delta\vec{\tau}), \end{aligned} \quad (2.3)$$

während für die Gittersummen gilt:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{R}} \exp(i\vec{k}\vec{R}) = \delta_{\vec{k}, \vec{Q}} \quad \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \exp(-i\vec{k}\vec{R}) = \delta_{\vec{R}, 0}$$

$\vec{Q}$ ist hier ein reziproker Gittervektor.

Die in 1.2. durchgeführte Diagonalisierung kann für die ferromagnetischen und Zeemanglieder in (2.1) sofort übernommen werden, wenn man folgendes berücksichtigt: Für das $\vec{f}$ -Gitter sind die Rollen der Operatoren $\tilde{S}^+$ und $\tilde{S}^-$ im Vergleich zum $\vec{l}$ -Gitter vertauscht. Während beim letzteren der Operator $\tilde{S}^-$, führt dort der Operator $\tilde{S}^+$ zur Erzeugung von Spinwellen. Außerdem gilt die zu (1.6) äquivalente Beziehung $\tilde{S}_{\vec{f}} \cdot \tilde{S}_{\vec{f}} = \tilde{S}_{\vec{f}}^+ \tilde{S}_{\vec{f}}^- - \hbar^2 \delta_{\vec{f},\vec{f}}^z + \tilde{S}_{\vec{f}}^z \tilde{S}_{\vec{f}}^z$. Bei den Zeemangliedern muß jedoch das Vorzeichen in der Holstein-Primakoff-Transformation für $\tilde{S}_{\vec{f}}^z$ beachtet werden. Es bleibt deshalb nur noch die Diagonalisierung des antiferromagnetischen Anteils. Da $\vec{l}$ und $\vec{f}$ nicht denselben Wertebereich durchlaufen, gilt hier statt (1.6) die Gleichung

$$\tilde{S}_{\vec{l}} \cdot \tilde{S}_{\vec{f}} = \frac{1}{2} (\tilde{S}_{\vec{l}}^- \tilde{S}_{\vec{f}}^+ + \tilde{S}_{\vec{l}}^+ \tilde{S}_{\vec{f}}^-) + \tilde{S}_{\vec{l}}^z \tilde{S}_{\vec{f}}^z. \quad (2.4)$$

Damit lautet der antiferromagnetische Anteil des Hamiltonoperators

$$\tilde{H}' = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_{\vec{l}, \vec{f}} J(\vec{l}-\vec{f}) \left[\tilde{S}_{\vec{l}}^z \tilde{S}_{\vec{f}}^z + \frac{1}{2} (\tilde{S}_{\vec{l}}^- \tilde{S}_{\vec{f}}^+ + \tilde{S}_{\vec{l}}^+ \tilde{S}_{\vec{f}}^-) \right]. \quad (2.5)$$

Analog zum ferromagnetischen Isolator wird die Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation (2.2) entwickelt und in erster Näherung nur das konstante Glied berücksichtigt. Auch hier kann man natürlich nur dann von einer Näherung sprechen, wenn der Beitrag der durch Abbruch der Reihenentwicklung vernachlässigten Glieder klein ist im Vergleich zu den mitgenommenen. Nach Fouriertransformation des Austauschintegrals nach (2.3) und der Operatoren gemäß

$$\begin{aligned} \tilde{a}_{\vec{k}}^- &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{r}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}^{\vec{l}}) \tilde{a}_{\vec{l}}^- & \tilde{b}_{\vec{k}}^- &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{r}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}^{\vec{f}}) \tilde{b}_{\vec{f}}^- \\ \tilde{a}_{\vec{k}}^+ &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{r}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}^{\vec{l}}) \tilde{a}_{\vec{l}}^+ & \tilde{b}_{\vec{k}}^+ &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{r}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}^{\vec{f}}) \tilde{b}_{\vec{f}}^+ \end{aligned} \quad (2.6)$$

geht (2.5) über in

$$\tilde{H}' = -s \sum_{\vec{k}} \left[I(0) (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{-\vec{k}}^- + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{-\vec{k}}^-) + 1(\vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{-\vec{k}}^+ + \tilde{a}_{-\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{k}}^-) \right] + s^2 \sum_{\vec{l}, \vec{f}} J(\vec{l}-\vec{f}) \dots \quad (2.7)$$

Das zweite Glied in der eckigen Klammer rührt von der runden Klammer in (2.4) her. Es zeigt, daß die beiden Untergitter im

allgemeiner, d.h. wenn $I(\vec{k}) \neq 0$ ist, nicht unabhängig voneinander angeregt werden können. In den untergitterbezogenen Spinwellenoperatoren $\tilde{a}$ und $\tilde{b}$ geschrieben, lautet der gesamte Hamiltonoperator (2.1) in dieser Näherung

$$\begin{aligned} \tilde{H} = H_0 + \tilde{H}_2 = H_0 + \sum_{\vec{k}} (E(\vec{k}) + \mu_B g B_Z) \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} (E(\vec{k}) - \mu_B g B_Z) \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}} \\ - s \sum_{\vec{k}} I(\vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} + \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+) \end{aligned} \quad (2.8)$$

mit der Energie H_0 des Néelzustandes und der Energie $E(\vec{k})$, die die Summe der Anregungsenergien von ferromagnetischem und Ising-term im antiferromagnetischen Hamiltonoperator ist:

$$\begin{aligned} H_0 = N s^2 (I(0) - L(0)) - 2 \mu_B g B_A N s \\ E(\vec{k}) = \mu_B g B_A - s [I(0) + L(\vec{k}) - L(0)] \end{aligned} \quad (2.9)$$

$I(\vec{p})$ und $L(\vec{p})$ sind die Fourierkomponenten von antiferromagnetischem und ferromagnetischem Austauschintegral nach (2.3, bzw. (1.12)). Zur Diagonalisierung von (2.8) werden durch die Bogoljubov-Transformation Boseoperatoren $\tilde{c}_{\vec{k}}, \tilde{c}_{\vec{k}}^+, \tilde{c}_{\vec{k}}^-, \tilde{c}_{\vec{k}}^{+}$ eingeführt:

$$\begin{aligned} \tilde{a}_{\vec{k}} = u(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}} + v(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}}^+ \quad \tilde{b}_{\vec{k}} = u(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}} + v(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}}^+ \\ \tilde{a}_{\vec{k}}^+ = u(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}}^+ + v(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}} \quad \tilde{b}_{\vec{k}}^+ = u(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}}^+ + v(\vec{k}) \tilde{c}_{\vec{k}} \end{aligned} \quad (2.10)$$

die den Bosonen Vertauschungsregeln genügen. Diese kanonische Transformation wurde von Bogoljubov in der Theorie der Suprafluidität vorgeschlagen [11/.

Mit Hilfe der Vertauschungsrelationen erhält man als Bedingung für die Größen $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$

$$u(\vec{k})^2 - v(\vec{k})^2 = 1. \quad (2.11)$$

Die in den neuen Operatoren nicht-diagonalen Terme des transformierten Hamiltonoperators verschwinden, wenn die folgende Gleichung erfüllt ist:

$$2u(\vec{k})v(\vec{k})E(\vec{k}) = (u(\vec{k})^2 + v(\vec{k})^2)sI(\vec{k}) .$$

Diese Bedingung wird erfüllt, wenn $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$, außer durch (2.11), durch die Ausdrücke

$$2u(\vec{k})^2 = \frac{E(\vec{k})}{W(\vec{k})} + 1 \qquad 2u(\vec{k})v(\vec{k}) = \frac{sI(\vec{k})}{W(\vec{k})} \qquad (2.12)$$

bestimmt sind, in denen $W(\vec{k})$ durch

$$W(\vec{k}) = \sqrt{E(\vec{k})^2 - (sI(\vec{k}))^2} \qquad (2.13)$$

definiert ist. Der diagonalisierte Hamiltonoperator lautet damit:

$$\begin{aligned} \tilde{H} = H_0 + \sum_{\vec{k}} (W(\vec{k}) - E(\vec{k})) + \sum_{\vec{k}} (W(\vec{k}) + \mu_B g B_z) \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^+ \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}} + \\ + \sum_{\vec{k}} (W(\vec{k}) - \mu_B g B_z) \tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}^+ \tilde{c}_{\uparrow \vec{k}} . \end{aligned} \qquad (2.14)$$

Die durch (2.13) definierte Größe ist somit die Anregungsenergie für die Spinwellenzustände $|\downarrow \vec{k}\rangle$ und $|\uparrow \vec{k}\rangle$, die durch Umklappen der Spins in die $-\vec{z}$ - bzw. $\vec{z}$ -Richtung erzeugt werden. Das betrachtete Modell eines Antiferromagneten führt zu einer Dispersionsrelation, die ohne äußeres Magnetfeld zweifach entartet ist. Die Aufspaltung im Magnetfeld beträgt nach (2.14) $2\mu_B g B_z$. Die Umkehrrelationen zu den Gleichungen (2.10) lauten:

$$\begin{aligned} \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}} &= u(\vec{k})\tilde{a}_{\vec{k}} - v(\vec{k})\tilde{b}_{\vec{k}}^+ & \tilde{c}_{\uparrow \vec{k}} &= u(\vec{k})\tilde{b}_{\vec{k}} - v(\vec{k})\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \\ \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^+ &= u(\vec{k})\tilde{a}_{\vec{k}}^+ - v(\vec{k})\tilde{b}_{\vec{k}} & \tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}^+ &= u(\vec{k})\tilde{b}_{\vec{k}}^+ - v(\vec{k})\tilde{a}_{\vec{k}} . \end{aligned} \qquad (2.15)$$

Daran ist die Wirkungsweise der Operatoren $\tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^+$ und $\tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}^+$ zu erkennen. Sie erzeugen Spinwellen durch das Umklappen von Spins in die $-\vec{z}$ - bzw. $+\vec{z}$ -Richtung. Sie sind damit auf eine bestimmte Richtung und nicht mehr auf ein einzelnes Untergitter bezogen. Sie bewirken im allgemeinen die gleichzeitige Anregung beider Untergitter. Nur für Punkte der Brillouinzone (BZ), für die $v(\vec{k})=0$ gilt, was äquivalent mit $I(\vec{k})=0$ ist, sind die Anregungen der beiden Untergitter entkoppelt (siehe unten). Im diagonalisierten Hamiltonoperator der Gleichung (2.14) tritt neben H_0 ,

der Energie des Néelzustandes, ein weiteres konstantes Glied auf. Die einzelnen Summenglieder in $\sum_{\vec{k}} (W(\vec{k}) - E(\vec{k}))$ sind negativ, wie man an der Definition der Spinwellenenergie sieht, so daß die Energie des wahren Grundzustandes tiefer als die Energie des Néelzustandes liegt, der infolgedessen nicht Grundzustand des Antiferromagneten sein kann. Der Mittelwert des in Gleichung (1.15) eingeführten Operators $\tilde{n}_{\vec{l}}$, der nach (1.16) ein Maß für die am Ort $\vec{l}$ umgeklappten Spins ist, ist im Grundzustand $|0\rangle$, der durch $\tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}|0\rangle=0$ und $\tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}|0\rangle=0$ definiert ist, gegeben durch:

$$\langle 0 | n_{\vec{l}} | 0 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} v(\vec{k})^2 .$$

Für $\tilde{n}_{\vec{l}}$ findet man denselben Wert, so daß das gesamte magnetische Moment verschwindet.

2.3. Die Spinwellendispersion von MnF_2

Die Spinwellenenergie ist durch

$$(\hbar\omega_{\vec{k}})^2 = W(\vec{k})^2 = \left[\mu_B g B_A - s(I(0) + L(\vec{k}) - L(0)) \right]^2 - s^2 I(\vec{k})^2 \quad (2.16)$$

gegeben. Da die Austauschintegrale nur vom Betrag des Abstandes zweier Ionen abhängen, kann bei den Fouriertransformierten der Austauschintegrale sofort zum Realteil übergegangen werden. Untersuchungen der Magnonendispersion von MnF_2 mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung zeigen, daß dieser Kristall sehr gut durch einen Heisenberg'schen Hamiltonoperator beschrieben werden kann, wobei nur die ersten drei Austauschintegrale von Null verschieden sind, /12/, /13/. Somit lauten die fouriertransformierten Austauschintegrale:

$$\begin{aligned} I(\vec{k}) &= J_2 \sum_{\vec{\delta}_2} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}_2} = J_2 \sum_{\vec{\delta}_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta}_2) = z_2 J_2 \mathcal{G}(\vec{k}) \\ L(\vec{k}) &= L_1 \sum_{\vec{\delta}_1} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}_1} + L_3 \sum_{\vec{\delta}_3} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}_3} = L_1 \sum_{\vec{\delta}_1} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta}_1) + L_3 \sum_{\vec{\delta}_3} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta}_3) = \\ &= z_1 L_1 \mathcal{T}(\vec{k}) + z_3 L_3 \mathcal{S}(\vec{k}) . \end{aligned} \quad (2.17)$$

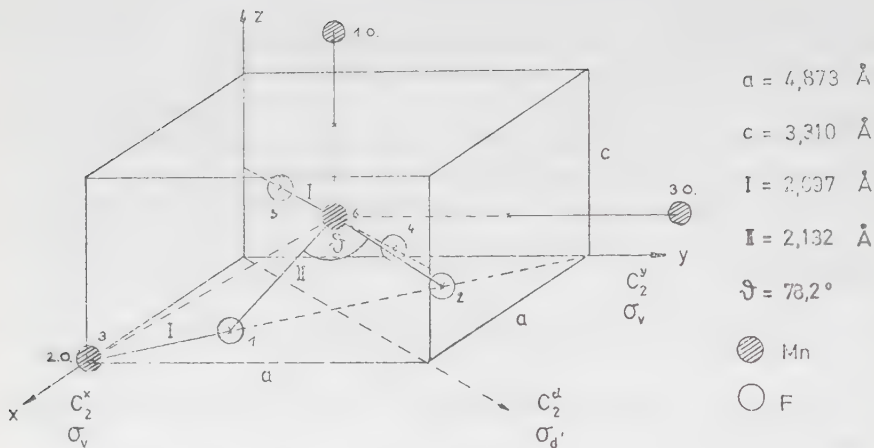


Abb. 1: Die Elementarzelle von MnF₂

Die Indizes 1,2 und 3 beziehen sich auf nächste, übernächste und drittnächste Nachbarn, z ist die entsprechende Anzahl und L_1 , J_2 und L_3 sind die Austauschintegrale. Die Größen $\sigma(\vec{k})$, $\tau(\vec{k})$ und $\vartheta(\vec{k})$ sind durch die Gleichungen (2.17) definiert. In der Abb.1 ist die Einheitszelle von MnF₂ mit den Nachbarn eines Ions bis zur dritten Ordnung dargestellt. Für eine solche Struktur, D_{4h}¹⁴ (oder P4₂/mm) in der paramagnetischen Phase, findet man für die Kosinussummen über die Nachbarn:

$$\begin{aligned}
 \sigma(\vec{k}) &= \cos(k_x \frac{a}{2}) \cos(k_y \frac{a}{2}) \cos(k_z \frac{c}{2}) \\
 \tau(\vec{k}) &= \cos(k_z c) \\
 \vartheta(\vec{k}) &= \frac{1}{2} \cos(k_x a) + \frac{1}{2} \cos(k_y a)
 \end{aligned}
 \tag{2.18}$$

und damit für die Spinwellendispersion:

$$\begin{aligned}
 (\hbar \omega_{\vec{k}})^2 &= [\mu_B g B_A + s z_2 J_2 + 2 s z_1 L_1 \sin^2(k_z \frac{c}{2}) + s z_3 L_3 (\sin^2(k_x \frac{a}{2}) + \sin^2(k_y \frac{a}{2}))]^2 - \\
 &\quad - [s z_2 J_2 \sigma(\vec{k})]^2.
 \end{aligned}
 \tag{2.19}$$

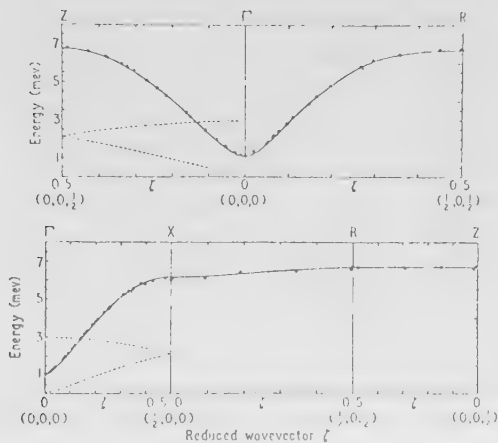


Abb. 2. Spinwellendispersion von MnF_2 nach /13/.

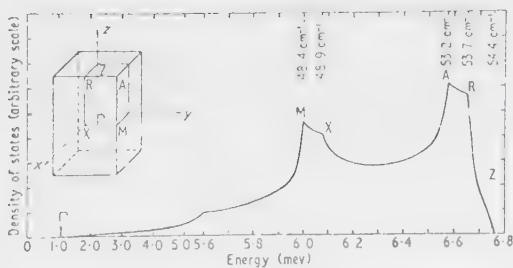


Abb. 3. Magnonenzustandsdichte von MnF_2 mit der Dispersion in Abb. 2 berechnet, nach /13/.

Bei Vernachlässigung der ferromagnetischen Wechselwirkung innerhalb der Untergitter wird die $\vec{k}$ -Abhängigkeit allein durch das Glied mit $\sigma(\vec{k})$ beschrieben. Da $\sigma(\vec{k})$ auf dem Rand der BZ verschwindet, führt diese Vernachlässigung zur energetischen Entartung der Spinwellen auf der Oberfläche der BZ. Tatsächlich zeigt aber das Experiment, daß die Energie der Magnonen auch auf der Oberfläche der BZ von $\vec{k}$ abhängt. In den Abbildungen 2 und 3 ist die Spinwellendispersion und die Zustandsdichte wiedergegeben, wie sie in /13/ bestimmt wurde. Die große Aufspaltung der Zustandsdichte in zwei scharfe Maxima im Abstand von etwa 5 cm^{-1} rührt von $L_1 \neq 0$ und die Struktur der einzelnen Maxima von $L_3 \neq 0$ her.

Im folgenden wird die Gleichung (2.16) für ein kubisch raumzentriertes Gitter mit Wechselwirkung nur zwischen zweitnächsten Nachbarn, eine grobe Näherung für das tetragonale MnF_2 , in langwelliger Näherung diskutiert.

Für kleine $\vec{k}$ wird $\sigma(\vec{k})$ entwickelt:

$$\sigma(\vec{k}) = \frac{1}{8} \sum_{\vec{\delta}} \left(1 - \frac{1}{2} (\vec{k} \cdot \vec{\delta})^2 \right) + o((\vec{k} \cdot \vec{\delta})^4).$$

Wenn $\vec{\delta}$ die 8 Kombinationen $\frac{1}{2}a(\pm\vec{e}_x \pm \vec{e}_y \pm \vec{e}_z)$ durchläuft, findet man

$$\sigma(\vec{k}) \approx 1 - \frac{1}{8} k^2 a^2.$$

Mit $I(\vec{k}) = I(0)\sigma(\vec{k})$ ist die Spinwellenenergie in dieser Näherung gegeben durch, wobei $\mu_B g = 1$ gesetzt wurde:

$$(\hbar\omega_{\vec{k}})^2 = [sI(0)]^2 \left[\frac{B_A}{sI(0)} \left(\frac{B_A}{sI(0)} + 2 \right) + \left(\frac{ka}{2} \right)^2 \right]. \quad (2.20a)$$

Für $\vec{k} \rightarrow 0$ erhält man daraus:

$$\hbar\omega_{\vec{k} \rightarrow 0} = sI(0) \sqrt{\frac{B_A}{sI(0)} \left(\frac{B_A}{sI(0)} + 2 \right)} \left(1 + \frac{1}{2 \frac{B}{sI(0)} \left(\frac{B}{sI(0)} + 2 \right)} \left(\frac{ka}{2} \right)^2 \right). \quad (2.20b)$$

Für $k^2 \gg \frac{B}{sI(0)} \left[\frac{B}{sI(0)} + 2 \right] \frac{2}{a^2}$, aber noch in langwelliger Näherung, so daß der Kosinus entwickelt werden kann, ergibt sich:

$$\hbar\omega_{\vec{k}} = sI(0) \frac{ka}{2}. \quad (2.20c)$$

Als Beispiel für die letzte Bedingung sei MnF_2 erwähnt, für das $\frac{\mu_B g_B}{s\Gamma(0)} \approx \frac{1}{70}$. Die Bedingung für (2.20c) bedeutet hier also $\frac{ka}{2} \gg 0.17$. Da andererseits der Fehler der Näherung für den Kosinus in $\sigma(\vec{k})$ bis $ka \leq 0.662$ den Wert 1% und für $ka \leq 1.036$ den Wert 10% nicht übersteigt, ist die Bedingung also erfüllbar.

Aus (2.20b) und (2.20c) folgt deshalb folgendes Aussehen der Dispersionskurve eines kubischen Antiferromagneten in der Mitte der BZ: Für $\vec{k}=0$ und bei verschwindendem äußeren Magnetfeld nimmt die Energie, anders als beim Ferromagneten, den endlichen Wert $s\Gamma(0) \sqrt{\frac{B}{s\Gamma(0)} \left(\frac{B}{s\Gamma(0)} + 2 \right)}$ an. Die Dispersionskurve hat für $\vec{k}=0$ eine horizontale Tangente wie bei optischen Phononen. Bei größeren $\vec{k}$ -Werten, aber noch in langwelliger Näherung, hängt im Falle $(\mu_B g_B) / [s\Gamma(0)] \ll 1$ die Energie linear von $|\vec{k}|$ ab.

2.4. Glieder höherer Ordnung im antiferromagnetischen Hamiltonoperator

Bei der Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation erhält man im Hamiltonoperator wie beim Ferromagneten Glieder vierfacher und höherer Ordnung in den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren. Diese Glieder können nicht mehr diagonalisiert werden, sondern geben im Spinwellenbild zu einer Wechselwirkung der Elementaranregungen Anlaß. Die ferromagnetischen Anteile zum gesamten Hamiltonoperator wurden bereits in (1.21) angegeben. Entwickelt man die Wurzel bis zu Gliedern linear in $\tilde{n}_1$ bzw. $\tilde{n}_2$, so erhält man als nächstes Glied in der Entwicklung des antiferromagnetischen Hamiltonoperators:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_4' = \frac{1}{4} \sum_{\vec{r}, \vec{r}'} J(\vec{r}-\vec{r}') \{ & \tilde{a}_1^\dagger \tilde{b}_{\vec{r}}^\dagger \tilde{b}_{\vec{r}'}^\dagger \tilde{b}_{\vec{r}'} + \tilde{a}_1^\dagger \tilde{a}_1^\dagger \tilde{a}_1 \tilde{b}_{\vec{r}}^\dagger + \tilde{a}_1 \tilde{b}_{\vec{r}}^\dagger \tilde{b}_{\vec{r}'} \tilde{b}_{\vec{r}'} + \tilde{a}_1^\dagger \tilde{a}_1 \tilde{a}_1 \tilde{b}_{\vec{r}} + \\ & + 4 \tilde{a}_1^\dagger \tilde{a}_1 \tilde{b}_{\vec{r}}^\dagger \tilde{b}_{\vec{r}'} \} . \end{aligned} \quad (2.21)$$

Der fouriertransformierte Hamiltonoperator der gesamten Wechselwirkung lautet damit:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_4 = & \frac{1}{4N} \sum_{1234} I(1) \left\{ (\tilde{b}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3^+ \tilde{a}_4 + \tilde{a}_1^+ \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_3^+ \tilde{b}_4) \delta(4+1-2-3) + \right. \\ & + (\tilde{a}_1 \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_3 \tilde{b}_4 + \tilde{b}_1 \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3 \tilde{a}_4) \delta(4-1-2+3) + 4 \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_{4+2} \tilde{b}_3^+ \tilde{b}_{4+3} \delta(4-1) \left. \right\} + \\ & + \frac{1}{4N} \sum_{1234} [L(1-2)+L(3)-2L(1)] (\tilde{a}_{2+4}^+ \tilde{a}_{3-4}^+ \tilde{a}_2 \tilde{a}_3 + \tilde{b}_{2+4}^+ \tilde{b}_{3-4}^+ \tilde{b}_2 \tilde{b}_3) \delta(4+1). \end{aligned} \quad (2.22)$$

Die Indizes 1, 2, 3 und 4 sind dabei als Abkürzungen für $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, $\vec{k}_3$ und $\vec{k}_4$ zu verstehen. Es wird daran erinnert, daß die Operatoren in (2.22) untergitterbezogen sind. Um den Wechselwirkungsoperator in die raumbezogenen Spinwellenoperatoren umzuschreiben, hat man jeden Operator in $\tilde{H}_4$ der Bogoljubov-Transformation zu unterwerfen. Jedes der vierfachen Operatorprodukte geht dabei in eine Summe von 16 vierfachen Produkten der Spinwellenoperatoren über, wobei jedes Produkt als Vorfaktor ein vierfaches Produkt der u's und v's enthält. Der resultierende Hamiltonoperator wird äußerst unübersichtlich. Da die untergitterbezogenen Operatoren jedoch einfache Linearkombinationen der Spinwellenoperatoren sind, kann man auch mit dem Wechselwirkungsoperator $\tilde{H}_4$ in der Form (2.22) arbeiten, wenn nicht explizit Gebrauch von den Spinwelleneigenfunktionen von $\tilde{H}_2$ gemacht wird, und in den endgültigen Ausdrücken den Übergang zu den Spinwellenoperatoren vornehmen.

Die Verwendung von $\tilde{H}_4$ hat jedoch den Nachteil, daß die Wirkung auf die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators $\tilde{H}_2$ nicht sofort einsichtig ist. Man überlegt sich aber sofort, daß die Bogoljubov-Transformation zu allen möglichen vierfachen Produkten der Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren für Spinwellen führt, die mit der Nebenbedingung vereinbar sind, daß sich die z-Komponente des Gesamtspins nicht ändert. Dies ist eine Folge davon, daß der Operator für den Gesamtspin mit $\tilde{H}$ vertauscht. Das bedeutet, daß z.B. Terme der Art $\tilde{c}_{\uparrow 1}^+ \tilde{c}_{\uparrow 2}^+ \tilde{c}_{\uparrow 3}^+ \tilde{c}_{\uparrow 4}^+$, $\tilde{c}_{\uparrow 1} \tilde{c}_{\uparrow 2}^+ \tilde{c}_{\uparrow 3}^+ \tilde{c}_{\uparrow 4}^+$, $\tilde{c}_{\uparrow 1} \tilde{c}_{\uparrow 2} \tilde{c}_{\uparrow 3} \tilde{c}_{\uparrow 4}$ auftreten, nicht jedoch solche der Art $\tilde{c}_{\uparrow 1}^+ \tilde{c}_{\uparrow 2}^+ \tilde{c}_{\uparrow 3}^+ \tilde{c}_{\uparrow 4}$, $\tilde{c}_{\uparrow 1} \tilde{c}_{\uparrow 2} \tilde{c}_{\uparrow 3} \tilde{c}_{\uparrow 4}$. Für die Wellenvektoren der Spinwellen gilt dabei ein Erhaltungssatz derart, daß die Summe der Wellenvektoren derjenigen Operatoren, die die z-Komponente des Gesamtspins um 1 erhöhen, $\tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}^+$, $\tilde{c}_{\uparrow \vec{k}}$, gleich ist der Summe der Wellenvektoren der Operatoren, die die z-Komponente um 1 erniedrigen, $\tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^+$, $\tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}$.

Unter den Gliedern, die je zwei Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren enthalten, gibt es einige, in denen die Erzeugungsoperatoren rechts von den entsprechenden Vernichtungsoperatoren stehen, z.B. $\tilde{c}_{\downarrow 1} \tilde{c}_{\downarrow 2} \tilde{c}_{\downarrow 3}^{\dagger} \tilde{c}_{\downarrow 4}^{\dagger}$. Diese Glieder ergeben auch bei $T=0$, wenn keine Magnonen im Gitter vorhanden sind, einen Beitrag zum gesamten Hamiltonoperator. Die Mehrzahl der Glieder wird jedoch nur für $T>0$ einen Beitrag liefern. Der Wechselwirkungsoperator zerfällt also in einen temperaturabhängigen und in einen temperaturunabhängigen Anteil. Auf diese Eigenschaft wird noch einmal eingegangen.

2.5. Einteilchen-Greenfunktionen für den antiferromagnetischen Isolator

Um das Anregungsspektrum des Antiferromagneten zu erhalten, kann man die Einteilchen-Greenfunktion $\langle\langle \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^{\dagger}(t); \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}'}(t') \rangle\rangle$ berechnen. Es ist jedoch bequemer, zu den untergitterbezogenen Operatoren überzugehen. Aus der Definition der Green'schen Funktionen in (1.24) folgt

$$\begin{aligned} \langle\langle \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}}^{\dagger}; \tilde{c}_{\downarrow \vec{k}'} \rangle\rangle &= u(\vec{k})u(\vec{k}') \langle\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}; \tilde{a}_{\vec{k}'} \rangle\rangle - u(\vec{k})v(\vec{k}') \langle\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}; \tilde{b}_{\vec{k}'}^{\dagger} \rangle\rangle - \\ &- u(\vec{k}')v(\vec{k}) \langle\langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{a}_{\vec{k}'} \rangle\rangle + v(\vec{k})v(\vec{k}') \langle\langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{b}_{\vec{k}'}^{\dagger} \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (2.23)$$

Die Zeitargumente wurden hier wieder unterdrückt.

In der Bewegungsgleichung wird nach t , dem Zeitargument des linken Operators, differenziert. Es tritt dabei der Kommutator des linken Operators mit $\tilde{H}$ auf. Der rechte Operator der Greenfunktion geht nur im Mittelwert des Kommutators der beiden Operatoren ein. Deshalb wird im folgenden der rechte Operator zunächst als freier Parameter angesehen und mit $\tilde{Q}$ bezeichnet. Es treten in (2.23) folglich nur zwei wesentlich verschiedene Green'sche Funktionen auf, nämlich $\langle\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t); \tilde{Q}(t) \rangle\rangle$ und $\langle\langle \tilde{b}_{\vec{k}}(t); \tilde{Q}(t) \rangle\rangle$. Die Bewegungsgleichungen für diese beiden Green'schen Funktionen lauten:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t); \tilde{Q}(t) \rangle\rangle &= \hbar \delta(t-t') \langle[\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t), \tilde{Q}(t)]\rangle + \langle\langle [\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t), \tilde{H}]; \tilde{Q}(t) \rangle\rangle \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \tilde{b}_{\vec{k}}(t); \tilde{Q}(t) \rangle\rangle &= \hbar \delta(t-t') \langle[\tilde{b}_{\vec{k}}(t), \tilde{Q}(t)]\rangle + \langle\langle [\tilde{b}_{\vec{k}}(t), \tilde{H}]; \tilde{Q}(t) \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (2.24)$$

2.5.1. Wechselwirkungsfreie Spinwellen

Bei Vernachlässigung der Wechselwirkung ist $\tilde{H}_4=0$ und der Hamiltonoperator durch $\tilde{H}=\tilde{H}_0+\tilde{H}_2$ gegeben. Im Anhang werden die verschiedenen Kommutatoren angegeben, die in (2.24) eingehen. Damit erhält man für die Bewegungsgleichungen:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{Q} \rangle &= \hbar \delta(t-t') \langle [\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{Q}] \rangle - (E(\vec{k}) + B_z) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{Q} \rangle + sI(\vec{k}) \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{Q} \rangle \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{Q} \rangle &= \hbar \delta(t-t') \langle [\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{Q}] \rangle - sI(\vec{k}) \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{Q} \rangle + (E(\vec{k}) - B_z) \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{Q} \rangle \end{aligned} \quad (2.25)$$

Hier wurden die Zeitargumente weggelassen und $\mu_B g = 1$ gesetzt. Fouriertransformation von (2.25) führt auf folgendes algebraisches Gleichungssystem:

$$\begin{pmatrix} \hbar\omega + E(\vec{k}) + B_z & -sI(\vec{k}) \\ sI(\vec{k}) & \hbar\omega - E(\vec{k}) + B_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{Q} \rangle(\omega) \\ \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{Q} \rangle(\omega) \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2\pi} \begin{pmatrix} \langle [\tilde{a}_{\vec{k}}^+, \tilde{Q}] \rangle \\ \langle [\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{Q}] \rangle \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

Ist $\tilde{Q}=\tilde{a}_{\vec{k}}^+$, dann steht rechts nach Definition der Operatoren der Spaltenvektor $\begin{pmatrix} -1 \\ 0 \end{pmatrix} \delta_{\vec{k}\vec{k}}$, im Falle $\tilde{Q}=\tilde{b}_{\vec{k}}^+$, der Spaltenvektor $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \delta_{\vec{k}\vec{k}}$. Mit der Determinante $\Delta_{\vec{k}}(\omega) = (\hbar\omega + B_z)^2 - W(\vec{k})^2$ findet man für die vier Green'schen Funktionen:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \rangle(\omega) &= \frac{\hbar}{2\pi} \delta_{\vec{k}\vec{k}} \frac{\hbar\omega + B_z - E(\vec{k})}{\Delta_{\vec{k}}(\omega)} \\ \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle(\omega) &= \frac{\hbar}{2\pi} \delta_{\vec{k}\vec{k}} \frac{\hbar\omega + B_z + E(\vec{k})}{\Delta_{\vec{k}}(\omega)} \\ \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+; \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle(\omega) &= \langle \tilde{b}_{\vec{k}}; \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \rangle(\omega) = \frac{\hbar}{2\pi} \delta_{\vec{k}\vec{k}} \frac{sI(\vec{k})}{\Delta_{\vec{k}}(\omega)} \end{aligned} \quad (2.27)$$

Zur Berechnung der Spektraldichte ist es günstig, $1/\Delta_{\vec{k}}(z)$ für $z = \omega \pm i\epsilon/\hbar$ umzuformen:

$$\frac{1}{(\hbar\omega + B_z \pm i\epsilon)^2 - W(\vec{k})^2} = \frac{1}{2W(\vec{k})} \left[\frac{1}{\hbar\omega + B_z - W(\vec{k}) \pm i\epsilon} - \frac{1}{\hbar\omega + B_z + W(\vec{k}) \pm i\epsilon} \right],$$

so daß der Sprung der Green'schen Funktion auf der reellen Achse zwei δ -Funktionen ergibt:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- \rangle (\omega) &= -\hbar \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{1-e^{-\beta\hbar\omega}} \frac{\hbar\omega+B_z-E(\vec{k})}{2W(\vec{k})} \left[\delta(\hbar\omega+B_z-W(\vec{k})) - \delta(\hbar\omega+B_z+W(\vec{k})) \right] \\ \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle (\omega) &= \hbar \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{1-e^{-\beta\hbar\omega}} \frac{\hbar\omega+B_z+E(\vec{k})}{2W(\vec{k})} \left[\delta(\hbar\omega+B_z-W(\vec{k})) - \delta(\hbar\omega+B_z+W(\vec{k})) \right] \\ \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle (\omega) &= \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{k}}^- \rangle (\omega) = \hbar \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{1-e^{-\beta\hbar\omega}} \frac{sI(\vec{k})}{2W(\vec{k})} \left[\delta(\hbar\omega+B_z-W(\vec{k})) - \delta(\hbar\omega+B_z+W(\vec{k})) \right]. \end{aligned} \quad (2.28)$$

Die Operatormittelwerte ergeben sich nach Fouriertransformation und Übergang zu gleichen Zeiten:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- \rangle &= - \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{2W(\vec{k})} \left[\frac{W(\vec{k})-E(\vec{k})}{1-e^{-\beta(W(\vec{k})-B_z)}} + \frac{W(\vec{k})+E(\vec{k})}{1-e^{\beta(W(\vec{k})+B_z)}} \right] \\ \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle &= \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{2W(\vec{k})} \left[\frac{W(\vec{k})+E(\vec{k})}{1-e^{-\beta(W(\vec{k})-B_z)}} + \frac{W(\vec{k})-E(\vec{k})}{1-e^{\beta(W(\vec{k})+B_z)}} \right] \\ \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle &= \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{k}}^- \rangle = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} \frac{sI(\vec{k})}{2W(\vec{k})} \left[\frac{1}{1-e^{-\beta(W(\vec{k})-B_z)}} - \frac{1}{1-e^{\beta(W(\vec{k})+B_z)}} \right]. \end{aligned} \quad (2.29)$$

Mit Hilfe der Transformationsgleichungen (2.15) und der Kopplungsfunktionen $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$ aus (2.11) und (2.12) lassen sich nun alle Mittelwerte von zweifachen Produkten von Spinwellenoperatoren angeben. Für die Mittelwerte der Besetzungszahloperatoren erhält man Boseverteilungen

$$\begin{aligned} \langle \tilde{c}_{\downarrow\vec{k}}^+ \tilde{c}_{\downarrow\vec{k}} \rangle &= \left[e^{(W(\vec{k})+B_z)/kT} - 1 \right]^{-1} \\ \langle \tilde{c}_{\uparrow\vec{k}}^+ \tilde{c}_{\uparrow\vec{k}} \rangle &= \left[e^{(W(\vec{k})-B_z)/kT} - 1 \right]^{-1}, \end{aligned} \quad (2.30)$$

während alle anderen Mittelwerte verschwinden.

Um allein dieses Ergebnis zu erhalten, hätte man natürlich nicht die Methode der Greenfunktionen anzuwenden brauchen. Die Berücksichtigung der Wechselwirkung führt jedoch auf analoge Gleichungen, so daß dort die Ergebnisse aus diesem Abschnitt sofort übernommen werden können.

2.5.2. Berücksichtigung der wechselwirkenden Spinwellen

Bei Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen den Magnonen treten in den Bewegungsgleichungen die Kommutatoren $[\tilde{a}_k^+(t), \tilde{H}_4]$ und $[\tilde{b}_k^-(t), \tilde{H}_4]$ auf. Das führt zu umfangreichen und unübersichtlichen Ausdrücken, die jedoch dieselbe Struktur wie beim Ferromagneten haben. Da sich die Rechnungen, abgesehen davon, daß sich hier ein zweidimensionales Gleichungssystem ergibt, nicht wesentlich von denjenigen beim Ferromagneten unterscheiden, werden sie hier nicht durchgeführt. Die wesentlichen Ausdrücke sind im Anhang zusammengestellt.

Um alle Terme gleicher Größenordnung zu erfassen, wird ein Größenordnungsparameter λ eingeführt, der am Ende der Rechnung gleich Eins gesetzt wird. Es wird also angenommen, daß die Holstein-Primakoff-Transformation und Entwicklung der Wurzel zu einer Entwicklung des Hamiltonoperators nach λ führt. Der Hamiltonoperator lautet damit $\tilde{H} = H_0 + \tilde{H}_2 + \lambda \tilde{H}_4$, mit $\tilde{H}_4$ aus Gleichung (2.22). Im Anhang sind die Kommutatoren von $\tilde{a}_k^+$ und $\tilde{b}_k^-$ mit den verschiedenen Gliedern von $\tilde{H}_4$ angegeben. Setzt man diese Ausdrücke in (2.24) ein, bekommt man Gleichungen, in denen wie beim Ferromagneten Green'sche Funktionen höherer Ordnung auftreten. Diese Green'schen Funktionen werden wie dort faktorisiert, indem alle in niedrigster Näherung nichtverschwindenden Mittelwerte der untergitterbezogenen Operatoren herausgezogen werden.

Es genügt, die Mittelwerte in dieser Näherung mitzunehmen, weil sie in den Bewegungsgleichungen als Faktoren in Termen proportional zu λ auftreten und Glieder höherer Ordnung in λ vernachlässigt werden. Die Faktorisierung ist im Anhang durchgeführt. Man erhält dabei die Green'schen Funktionen $\langle\langle \tilde{a}_k^+(t); \tilde{Q}(t') \rangle\rangle$ und $\langle\langle \tilde{b}_k^-(t); \tilde{Q}(t') \rangle\rangle$ mit Faktoren, die von den Besetzungszahlen der Spinwellen abhängen. Aus diesem Grund führt die Berücksichtigung der Wechselwirkung nur dazu, daß das Gleichungssystem (2.26) übergeht in das folgende:

$$\begin{pmatrix} \hbar\omega + \hat{E}(\vec{k}) & -s\hat{I}(\vec{k}) \\ s\hat{I}(\vec{k}) & \hbar\omega - \hat{E}(\vec{k}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle\langle \tilde{a}_k^+; \tilde{Q} \rangle\rangle(\omega) \\ \langle\langle \tilde{b}_k^-; \tilde{Q} \rangle\rangle(\omega) \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2\pi} \begin{pmatrix} \langle[\tilde{a}_k^+, \tilde{Q}] \rangle \\ \langle[\tilde{b}_k^-, \tilde{Q}] \rangle \end{pmatrix}. \quad (2.31)$$

Hier und im folgenden wird nur der Fall $E_z=0$ behandelt. Die Größen $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$ sind durch die Gleichungen

$$\hat{E}(\vec{k}) = E(\vec{k}) + \frac{\lambda}{2N} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{k}) \quad \hat{I}(\vec{k}) = I(\vec{k}) - \frac{\lambda}{2Ns} \sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{k}) \quad (2.32)$$

definiert, wo zur Abkürzung

$$\begin{aligned} G(\vec{p}, \vec{k}) &= I_{\vec{p}} [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle] + [I_0 - I_0 + L_{\vec{k}} + L_{\vec{p}} - L_{\vec{p}-\vec{k}}] [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle] \\ H(\vec{p}, \vec{k}) &= I_{\vec{k}} [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle] + I_{\vec{k}-\vec{p}} [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle] \end{aligned} \quad (2.33)$$

gesetzt wurde. Es wird darauf hingewiesen, daß sich der erste Vektor im Argument von G und H auf die Mittelwerte bezieht. Außerdem wurde in (2.33) der Wellenvektor als Index der Austauschintegrale geschrieben.

Der einzige Unterschied zwischen den Gleichungssystemen (2.26) und (2.31) besteht darin, daß in letzterem die renormierten Größen $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$ stehen. Wegen der formalen Gleichheit kann man sofort die Ergebnisse der Gleichungen (2.27) und (2.28) übernehmen. Für die Determinante erhält man

$$\hat{A}_{\vec{k}}(\omega) = (\hbar\omega)^2 - \hat{E}(\vec{k})^2 + [s\hat{I}(\vec{k})]^2 \quad (2.34)$$

Die renormierte Spinwellenenergie ist durch

$$\hat{W}(\vec{k})^2 = \hat{E}(\vec{k})^2 - [s\hat{I}(\vec{k})]^2 \quad (2.35)$$

definiert. Damit erhält man die Operatormittelwerte durch einfache Umformung für $E_z=0$ aus den Gleichungen (2.29):

$$\begin{aligned} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle &= \frac{\delta \vec{k} \vec{k}'}{2} \left[\frac{\hat{E}(\vec{k})}{\hat{W}(\vec{k})} \coth(\beta \hat{W}_{\vec{k}}/2) - 1 \right] \\ \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle &= \frac{\delta \vec{k} \vec{k}'}{2} \left[\frac{\hat{E}(\vec{k})}{\hat{W}(\vec{k})} \coth(\beta \hat{W}_{\vec{k}}/2) + 1 \right] \\ \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle &= \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle = \frac{\delta \vec{k} \vec{k}'}{2} \frac{s\hat{I}(\vec{k})}{\hat{W}(\vec{k})} \coth(\beta \hat{W}_{\vec{k}}/2) \end{aligned} \quad (2.36)$$

Um die Mittelwerte der Besetzungszahloperatoren zu erhalten, hat man (2.11), (2.12), (2.15) mit (2.36) zu kombinieren. Die Korrelationsfunktionen $\phi(\vec{k})$ und $\psi(\vec{k})$ sind jedoch durch die unrenormierten

Größen $E(\vec{k})$ und $I(\vec{k})$ definiert. Der Grund dafür ist, daß die Diagonalisierung nur mit $\tilde{H}_2$, ohne Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen, durchgeführt wurde. Für einen Antiferromagneten, der ausschließlich durch Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn auf verschiedenen Untergittern gekennzeichnet ist, und der ein raumzentriertes* Gitter besitzt, sind die Renormierungsfaktoren von $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$, und damit auch von $\hat{W}(\vec{k})$ identisch, so daß man in den Vorfaktoren der coth-Funktionen in (2.36) die unrenormierten Größen schreiben kann. Für die mittleren Besetzungszahlen der Spinwellenzustände $|\downarrow\vec{k}\rangle$ und $|\uparrow\vec{k}\rangle$ erhält man Boseverteilungsfunktionen mit der renormierten Spinwellenenergie:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{c}_{\downarrow\vec{k}}^+ \tilde{c}_{\downarrow\vec{k}} \rangle &= [e^{\hat{W}(\vec{k})/kT} - 1]^{-1} \\ \langle \tilde{c}_{\uparrow\vec{k}}^+ \tilde{c}_{\uparrow\vec{k}} \rangle &= [e^{\hat{W}(\vec{k})/kT} - 1]^{-1} \end{aligned} \quad (2.38)$$

2.5.3. Physikalische Bedeutung der Näherung

Die bei der Faktorisierung der Green'schen Funktionen in 2.5.2. durchgeführte Näherung ist bis zu Gliedern proportional zu λ äquivalent damit, im Wechselwirkungs-Hamiltonoperator nur Glieder proportional zu zweifachen Produkten der Besetzungszahloperatoren $\tilde{n}_{\downarrow\vec{k}}$ und $\tilde{n}_{\uparrow\vec{k}}$ mitzunehmen und jeweils einen Besetzungszahloperator durch seinen Mittelwert zu ersetzen. In der Sprache der untergitterbezogenen Operatoren bedeutet dies, in (2.22) alle jene Glieder zu berücksichtigen, die diagonal in ab , a^+b^+ , a^+a und b^+b sind. Die linearisierten Glieder können mit dem Hamiltonoperator $\tilde{H}_2$ aus Gleichung (2.8) zusammengefaßt werden. Dabei erhält man einen effektiven Einteilchen-Hamiltonoperator:

$$\tilde{H}_2^{\text{eff}} = \sum_{\vec{k}} \hat{E}(\vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}) - s \sum_{\vec{k}} \hat{I}(\vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ + \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}) \quad (2.37)$$

mit $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$ aus Gleichung (2.32). Der effektive Hamiltonoperator $\tilde{H}_2^{\text{eff}}$ stimmt formal mit $\tilde{H}_2$ überein, so daß man alle Ergebnisse der Diagonalisierung von $\tilde{H}_2$ direkt übernehmen kann, wenn man $E(\vec{k})$, $I(\vec{k})$, $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$ durch die entsprechenden

*gemeint ist wieder das Metallionen-Untergitter

renormierten Größen ersetzt. Die renormierte Spinwellenenergie ergibt sich dann wie in 2.2. und ist durch eine zu (2.13) analoge Gleichung definiert. Die Mittelwerte der Spinwellenbesetzungsoperatoren kann man sofort aus (2.30) übernehmen, wenn man dort $W(\vec{k})$ durch $\hat{W}(\vec{k})$ ersetzt.

Die Näherung in 2.5.2. berücksichtigt demnach von der Vielzahl der Glieder in $\tilde{H}_4$ nur solche, die die Vernichtung und Erzeugung ein und derselben Spinwelle $|\downarrow\vec{k}\rangle$ bzw. $|\uparrow\vec{k}\rangle$ beschreiben. Insbesondere werden alle Streuglieder vernachlässigt, die z.B. die Vernichtung zweier Magnonen mit $\vec{k}_1$ und $\vec{k}_2$ und die Erzeugung zweier anderer mit $\vec{k}_1+\vec{k}$ und $\vec{k}_2-\vec{k}$ beschreiben. Diese Terme des Hamiltonoperators sind für die endliche Lebensdauer der Spinwellen verantwortlich.

2.5.4. Die Untergittermagnetisierung

Der Erwartungswert der Untergittermagnetisierung für das $\vec{l}$ -Gitter ist durch folgende Beziehung gegeben:

$$\langle \tilde{M}_l(T) \rangle = \frac{\mu_B g}{N} \langle \sum_{\vec{l}} \tilde{S}_l^Z \rangle. \quad (2.38)$$

Für das $\vec{l}$ -Gitter gilt eine analoge Beziehung für $\langle \tilde{M}_l \rangle$. Wegen der Translationssymmetrie ist $\langle \tilde{M} \rangle$ im wesentlichen gleich dem Erwartungswert der $\vec{z}$ -Komponente des Spins eines Ions. In der Spinwellennäherung geht man von $\tilde{S}_1^Z$ zu den untergitterbezogenen Operatoren $\tilde{n}_{\vec{k}} = \tilde{a}_{\vec{k}}^\dagger \tilde{a}_{\vec{k}}$ über, deren Mittelwerte in (2.36) angegeben sind. Man erhält damit in Spinwellennäherung:

$$\langle \tilde{M}_l(T) \rangle = \mu_B g N s \left[1 + \frac{1}{2s} - \frac{1}{2Ns} \sum_{\vec{k}} \frac{\hat{E}(\vec{k})}{\hat{W}(\vec{k})} \coth\left(\frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}\right) \right]. \quad (2.39)$$

Da der Néelzustand nicht Grundzustand des Antiferromagneten ist, nimmt $\langle M_l(0) \rangle$ am absoluten Nullpunkt nicht den Wert $\mu_B g N s$ an, sondern ist kleiner:

$$\langle \tilde{M}_l(0) \rangle = \mu_B g N s \left[1 + \frac{1}{2s} - \frac{1}{2Ns} \sum_{\vec{k}} \frac{\hat{E}(\vec{k})}{\hat{W}(\vec{k})} \right]. \quad (2.40)$$

Die Klammer ist tatsächlich kleiner als Eins, weil außer für die Punkte auf der Oberfläche der BZ $\hat{E}(\vec{k}) > \hat{W}(\vec{k})$ gilt.

Bei der Néeltemperatur T_N verschwindet die antiferromagnetische Ordnung, und damit wird $\langle \hat{S}_1^z(T_N) \rangle = 0$. Deshalb verschwindet bei T_N auch die Untergittermagnetisierung. Die Spinwellennäherung erfüllt diese Forderung nicht, wie in Abb. 44 zu sehen ist. Auf dieses Problem wird noch einmal zurückgekommen.

2.6. Diskussion der renormierten Spinwellenenergie

Die renormierte Spinwellenenergie $\hat{W}(\vec{k})$ ist durch die Gleichung (2.35) definiert. Setzt man hier die Größen $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$ aus (2.32) ein, erhält man:

$$\hat{W}(\vec{k})^2 = W(\vec{k})^2 \left\{ 1 + 2 \frac{\lambda E(\vec{k})}{2NW(\vec{k})^2} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{k}) + 2 \frac{\lambda s I(\vec{k})}{2NW(\vec{k})^2} \sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{k}) + \left(\frac{\lambda}{2NW(\vec{k})} \right)^2 \left[\left(\sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{k}) \right)^2 - \left(\sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{k}) \right)^2 \right] \right\} .$$

Dies ist bis zu Gliedern proportional zu λ identisch mit

$$\hat{W}(\vec{k})^2 = W(\vec{k})^2 \left[1 + \frac{E(\vec{k})}{2NW(\vec{k})^2} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{k}) + \frac{s I(\vec{k})}{2NW(\vec{k})^2} \sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{k}) \right]^2, \quad (2.41)$$

wobei $\lambda=1$ gesetzt wurde. Diese Gleichung gilt für alle Antiferromagnete, die durch den Hamiltonoperator (2.1) beschrieben werden, unabhängig von der Struktur des Gitters und den aktuellen Austauschparametern.

In dieser Schreibweise wirkt sich die Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen in einem $\vec{k}$ - und T -abhängigen Faktor $h_{\vec{k}}(T)$ der Energie aus, der durch die Klammer in (2.41) definiert ist. In 2.6.2. wird eine andere Schreibweise angegeben, die ein besonderes Licht auf die $\vec{k}$ -Abhängigkeit wirft.

Für die folgende Diskussion wird eine Spezialisierung vorgenommen: Es wird ein raumzentriertes* Gitter betrachtet und von den Austauschintegralen zwischen Ionen verschiedener Untergitter nur das zwischen nächstbenachbarten als von Null verschieden angenommen. Diese Einschränkungen haben die Identität $\sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p})g(\vec{p}) = I(\vec{k})/I(0) \sum_{\vec{p}} I(\vec{p})g(\vec{p})$ zur Folge. Hier bezeichnet $g(\vec{p})$ den Mittelwert eines zweifachen Produktes von untergitterbezogenen Operatoren. Der Beweis verläuft wie beim Ferromagneten.

* siehe Seite 38

Die Größen $G(\vec{p}, \vec{k})$ und $H(\vec{p}, \vec{k})$ in (2.41) hängen nach (2.33) von den renormierten Mittelwerten (2.36) ab. Die dort auftretenden Faktoren $\hat{E}(\vec{k})/\hat{W}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})/\hat{W}(\vec{k})$ werden durch $E(\vec{k})/W(\vec{k})$ und $I(\vec{k})/W(\vec{k})$ ersetzt, da die Korrektur und die Größen G und H selbst von gleicher Ordnung in λ sind. Unter diesen Voraussetzungen erhält man für den Renormierungsfaktor $h_{\vec{k}}(T)$:

$$h_{\vec{k}}(T) = 1 + \frac{I_0 E_{\vec{k}} + s I_{\vec{k}}^2}{2 N W_{\vec{k}}^2 I_0} \sum_{\vec{p}} \left[\frac{I_0 E_{\vec{p}} + s I_{\vec{p}}^2}{W_{\vec{p}}} (2 \hat{N}_{\vec{p}+1}) - I_0 \right] + \frac{E_{\vec{k}}}{2 N W_{\vec{k}}^2} \sum_{\vec{p}} [L_{\vec{k}} - L_0 + L_{\vec{p}} - L_{\vec{p}-\vec{k}}] \left[\frac{E_{\vec{p}}}{W_{\vec{p}}} (2 \hat{N}_{\vec{p}+1}) - 1 \right] \quad (2.42)$$

$\hat{N}_{\vec{p}}$ sind die Besetzungszahlen der Spinwellenzustände $|\downarrow \vec{p}\rangle$ und $|\uparrow \vec{p}\rangle$ nach Gleichung (2.38), B_z wurde gleich Null gesetzt. Für $T=0$ verschwinden alle $\hat{N}_{\vec{p}}$. Trotzdem verschwindet $h_{\vec{k}}(0)$ nicht, sondern nimmt den Wert

$$h_{\vec{k}}(0) = 1 + \frac{I_0 E_{\vec{k}} + s I_{\vec{k}}^2}{2 N W_{\vec{k}}^2 I_0} \sum_{\vec{p}} \left[\frac{I_0 E_{\vec{p}} + s I_{\vec{p}}^2}{W_{\vec{p}}} - I_0 \right] + \frac{E_{\vec{p}}}{2 N W_{\vec{k}}^2} \sum_{\vec{p}} [L_{\vec{k}} - L_0 + L_{\vec{p}} - L_{\vec{p}-\vec{k}}] \left[\frac{E_{\vec{p}}}{W_{\vec{p}}} - 1 \right] \quad (2.43)$$

an. Das ist eine Folge davon, daß der Wechselwirkungs-Hamiltonoperator in einen temperaturabhängigen und -unabhängigen Anteil zerfällt, worauf bereits in 2.4. hingewiesen wurde.

2.6.1. Einfacher isotroper Antiferromagnet

In diesem Spezialfall verschwinden zusätzlich zu der obigen Einschränkung alle Austauschintegrale innerhalb der Untergitter und auch das Anisotropiefeld B_A . In diesem Fall ist $E(\vec{k})$ nach (2.9) unabhängig von $\vec{k}$ und gleich $-sI(0)$. Die Spinwellenenergie ist $W(\vec{k}) = sI(0) \sqrt{1 - \sigma(\vec{k})^2}$. Die Gleichungen (2.42) und (2.43) gehen damit über in

$$h(0) = 1 + \frac{1}{2s} - \frac{1}{2Ns} \sum_{\vec{p}} \sqrt{1 - \sigma(\vec{p})^2} \quad (2.44)$$

$$h(T) = h(0) + \frac{1}{s^2 I(0) N} \sum_{\vec{p}} W(\vec{p}) \hat{N}_{\vec{p}}$$

Hier ist der Index $\vec{k}$ weggelassen worden, weil die Funktion h unabhängig von $\vec{k}$ ist. Mit $h(0)=1$ stellt die zweite Gleichung das Ergebnis von White /14/ dar. In dieser Näherung tritt wieder genau dieselbe Schwierigkeit wie beim Ferromagneten auf. Für $\vec{k}=0$ wird die Magnonenenergie Null, so daß die Besetzungszahl beliebig groß werden kann. Man setzt deshalb wieder $\hat{N}_0=0$. Formal ergibt sich in (2.44) allerdings keine Schwierigkeit, weil $\lim_{\vec{p} \rightarrow 0} \frac{W_{\vec{p}}}{\vec{p}} \hat{N}_{\vec{p}}$ endlich bleibt.

Die Größe $h(0)$ in (2.44) ist unabhängig vom Austauschintegral und hängt nur von der Struktur des Gitters und vom Spin s ab. Für ein kubisches Gitter erhält man aus (2.44):

$h(0) = 1 + (1/2s) \cdot 0.07304$. In die zweite Gleichung (2.44) geht das Austauschintegral nur über $\hat{N}_{\vec{p}}$ ein.

Eine erste Verallgemeinerung erhält man, wenn man ein Anisotropiefeld B_A und Wechselwirkung zwischen ersten ferromagnetischen Nachbarn zuläßt. Da dieser Fall in der Diskussion der Renormierung von MnF_2 im nächsten Abschnitt enthalten ist, wird hier nur die Renormierungsfunktion angegeben, um sie mit dem Ergebnis von Low /15/ zu vergleichen. Man findet in der Schreibweise der Gleichung (2.41):

$$h_{\vec{k}}(T) = 1 + \frac{\beta \vec{k}}{s^2 I_{ON}} \sum_{\vec{p}} \beta_{\vec{p}} W_{\vec{p}} (\hat{N}_{\vec{p}+1/2}) - \frac{\gamma \vec{k}}{s^2 L_{ON}} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}} W_{\vec{p}} (\hat{N}_{\vec{p}+1/2}) - \frac{\beta \vec{k}}{2s} + \frac{\gamma \vec{k}}{2s L_{ON}} \sum_{\vec{p}} (L_0 - L_{\vec{p}})$$

mit

$$\beta(\vec{k}) = \frac{s I_{ON} E_{\vec{k}} + s^2 I_{\vec{k}}^2}{W_{\vec{k}}^2}, \quad \gamma(\vec{k}) = \frac{s E_{\vec{k}} (L_0 - L_{\vec{k}})}{W_{\vec{k}}^2}.$$

Die Formel von Low berücksichtigt nur den temperaturabhängigen Anteil von $h_{\vec{k}}(T)$. Außerdem fehlt das Glied proportional zu γ , obwohl die Formel für einen Heisenberg'schen Hamiltonoperator mit $L_1 \neq 0$ gelten soll. Offensichtlich ist deshalb die Übereinstimmung von Theorie und Experiment in der Arbeit von Sell et al. /16/ nicht besonders gut.

Da die Gleichungen (2.44) unabhängig von $\vec{k}$ sind, könnte man annehmen, daß sie auch für langwellige Spinwellen gültig sind. Das ist jedoch nicht der Fall. Einen Hinweis darauf erhält man, wenn

man in (2.42) und (2.43) für alle $\vec{p}$ $L(\vec{p})=0$ setzt, das heißt die Austauschwechselwirkung innerhalb der Untergitter vernachlässigt, und außerdem den Fall $B_A \ll |I(0)|$ betrachtet. Der Vorfaktor der Summe ist dann praktisch gleich

$$- \frac{1}{2sI_0 N} \left[1 - \frac{1}{2 - sI_0(1 - \sigma(\vec{k})^2)/B_A} \right].$$

Macht man hier den Grenzübergang $\vec{k} \rightarrow 0$, das bedeutet $\sigma(\vec{k}) \rightarrow 1$, so erhält man für den Vorfaktor in dieser Näherung $-1/[4sI(0)N]$. Macht man andererseits zuerst den Grenzübergang $B_A \rightarrow 0$, wie es dem obigen Vorgehen entspricht, fällt das zweite Glied in der Klammer weg, und der Vorfaktor wird unabhängig von $\sigma(\vec{k})$. Der Vorfaktor ist in diesem Fall gleich $-1/[2sI(0)N]$ und damit um den Faktor 2 größer als beim Grenzübergang $k \rightarrow 0$. Diese Überlegung zeigt, daß die Renormierungsfunktion $h_{\vec{k}}(T)$ für $B_A \rightarrow 0$ und $\vec{k} \rightarrow 0$ nicht stetig ist, und auch nicht stetig fortgesetzt werden kann. Die Mitte der BZ liegt außerhalb des Definitionsbereiches von $h_{\vec{k}}(T)$.

2.6.2. Spinwellenrenormierung für MnF_2

In (2.19) wurde der Ausdruck für die Spinwellenenergie $W(\vec{k})$ für MnF_2 angegeben, wie sie sich aus dem Hamiltonoperator $\tilde{H}_2$ unter Berücksichtigung der experimentellen Ergebnisse von Okazaki et al./12/ und Nikotin et al./13/ ergibt. Die Magnonendispersion wird im wesentlichen durch das effektive Anisotropiefeld B_A und die drei Austauschintegrale L_1 , J_2 und L_3 beschrieben.

Man kann unter Berücksichtigung dieser Konstanten die Renormierung anders interpretieren. Dazu geht man direkt von der Definition von $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{I}(\vec{k})$ in (2.32) aus. Für das raumzentrierte* Gitter folgt für $\hat{I}(\vec{k})$ sofort:

$$\hat{I}(\vec{k}) = z_2 J_2 \sigma(\vec{k}) \left[1 - \frac{1}{2sN} \sum_{\vec{p}} (2n(\vec{p}) + 2m(\vec{p}) \sigma(\vec{p})) \right], \quad (2.45)$$

mit $n(\vec{p}) = \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle = \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle$, wobei $B^z=0$ gesetzt wurde, und $m(\vec{p}) = \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle = \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle$ aus (2.36). Nach einigen Umformungen, die im Anhang angegeben sind, erhält man für $\hat{E}(\vec{k})$:

*siehe Seite 38

$$\hat{E}(\vec{k}) = B_A - sz_2 \hat{J}_2 + 2sz_1 L_1 \sin^2(k_z \frac{c}{2}) \left[1 - \frac{2}{2sN} \sum_{\vec{p}} 2n(\vec{p}) \sin^2(p_z \frac{c}{2}) \right] + \quad (2.46)$$

$$+ sz_3 L_3 \left[\sin^2(k_x \frac{a}{2}) + \sin^2(k_y \frac{a}{2}) \right] \left[1 - \frac{2}{2sN} \sum_{\vec{p}} 2n(\vec{p}) \sin^2(p_x \frac{a}{2}) \right],$$

wobei $\hat{J}_2$ das mit der eckigen Klammer aus (2.45) multiplizierte antiferromagnetische Austauschintegral ist. In dieser Schreibweise führt die Berücksichtigung der Wechselwirkung zu einer Renormierung der Austauschintegrale, weil man die eckigen Klammern in (2.46) als Renormierungsfunktionen der Austauschintegrale L_1 und L_3 ansehen kann. Die effektive Wechselwirkung zwischen den Ionen nimmt mit der Temperatur ab.

In dieser Darstellung ist die Ursache für die $\vec{k}$ -Abhängigkeit der Renormierung zu erkennen. Sie hat ihren Grund darin, daß die ferro- und antiferromagnetischen Austauschintegrale verschieden renormiert sind und das Anisotropiefeld hier wegen der Verhältnisse bei MnF_2 als Konstante angesehen wurde. (Geht man von dieser Einschränkung ab, so erhält man für B_A eine weitere Renormierungsfunktion.) Aus dieser Sicht kommt der $\vec{k}$ -Abhängigkeit in (2.42) keine große physikalische Bedeutung zu.

Man findet also beim Antiferromagneten ein ähnliches Ergebnis wie beim Ferromagneten, wo sich für das raumzentrierte Gitter und bei Beschränkung der Wechselwirkung auf nächste Nachbarn eine $\vec{k}$ -unabhängige Renormierung ergab. Beide Ergebnisse stimmen nicht mit der Erfahrung überein, worauf bereits in 2.6.1 hingewiesen wurde.

Im experimentellen Teil dieser Arbeit werden die in diesem Abschnitt angegebenen Gleichungen für einige Punkte der BZ numerisch ausgewertet und die Ergebnisse mit dem Experiment verglichen.

3. Ramanstreuung an Magnonen

Das elektromagnetische Feld kann in langwelliger Näherung über den magnetischen Dipolterm $\vec{H}_M = -\mu_B g \vec{B} \cdot \vec{L} \vec{S}$, oder den elektrischen Dipolterm $\vec{H}_E = -e \vec{E} \cdot \vec{L} \vec{S}$, mit dem Kristall in Wechselwirkung treten. Für die Ramanstreuung an Spinwellen wurden diese beiden Möglichkeiten von Bass und Kaganov /17/ bzw. Elliott und Loudon /18/ untersucht. Der von den russischen Autoren mit $\vec{H}_M$ abgeschätzte Streuquerschnitt ist um Größenordnungen kleiner, als er im Experiment beobachtet wird. Außerdem werden die Auswahlregeln nicht richtig vorhergesagt /19/.

Andererseits kann der Term $\vec{H}_E$ nicht direkt mit dem Spinsystem koppeln. Die englischen Autoren berücksichtigen deshalb als zusätzliche Wechselwirkung die Spin-Bahn-Kopplung, die auch in Systemen mit einem L=0 Grundzustand über die virtuellen Zwischen-niveaus einen Beitrag liefern kann. Sie schätzen in dritter Ordnung der Störungsrechnung den Streuquerschnitt für Ramanstreuung erster Ordnung ab und erhalten einen Wert, der vergleichbar ist mit dem Streuquerschnitt für Ramanstreuung an Phononen. Der elektrische-Dipol-Mechanismus wurde später von anderen Autoren weiter untersucht, z.B. /20/ und /21/. Der erste experimentelle Nachweis der Ramanstreuung an Spinwellen gelang 1966 an FeF_2 , /22/, und in der Folgezeit wurde eine Vielzahl von Antiferromagneten mit Hilfe der Ramanstreuung untersucht, /23/. Alle diese Experimente stehen im Einklang mit der Theorie von Elliott und Loudon für die Streuung erster Ordnung. Bei den Experimenten wurden jedoch auch Banden gefunden, die der Streuung zweiter Ordnung an Spinwellen zugeordnet werden. Der experimentell ermittelte Streuquerschnitt für diesen Prozeß ist zumindest demgegenüber für die Streuung erster Ordnung gleich. Zur Erklärung dieser Situation kann der Mechanismus der Spin-Bahn-Kopplung nicht herangezogen werden, weil dabei die Ramanstreuung zweiter Ordnung erst in vierter Ordnung der Störungsrechnung auftritt und deshalb einen kleineren Streuquerschnitt als die Streuung erster Ordnung haben würde. Zur Erklärung der "anomalen" großen Streuintensität für die Zweimagnonen-Ramanstreuung wurden drei Mechanismen vorgeschlagen. Zur Erklärung der Zweimagnonenabsorption von FeF_2

führen Halley und Silvera /24/ die Dipol-Quadrupol-Wechselwirkung zwischen Paaren von magnetischen Ionen an. Tanabe et al. /25/ zeigen, daß diese Bande, wie auch die von Greene et al. /75/ an MnF_2 untersuchten Spinwellenseitenbanden, durch einen anderen Mechanismus interpretiert werden kann. Sie schlagen die Austauschwechselwirkung zwischen angeregten Zuständen zweier magnetischer Ionen vor. Schließlich weist Halley /26/ darauf hin, daß die Modulation des Austauschintegrals durch infrarot-aktive optische Phononen ebenfalls zur Erklärung der Experimente herangezogen werden kann.

Fleury und Loudon /19/ interpretieren die Zweimagnonen-Ramanstreuung an MnF_2 im "excited state exchange interaction"-Mechanismus von Tanabe et al. Alle drei Mechanismen führen zur Erzeugung von Paaren von Spinwellen, so daß kein Zusammenhang mit der Einmagnonen-Ramanstreuung und kein Grund für geringere Intensität besteht.

3.1. Der effektive Wechselwirkungs-Hamiltonoperator für Zweimagnonen-Ramanstreuung an MnF_2

Unabhängig von der tatsächlichen Form der Wechselwirkung von elektromagnetischem Feld und Spinsystem kann durch Symmetriebetrachtung ein effektiver Wechselwirkungs-Hamiltonoperator aufgestellt werden, der die Ein- bzw. Zweimagnonen-Ramanstreuung in erster Ordnung der Störungsrechnung beschreibt. Für die Zweimagnonenstreuung an Antiferromagneten mit Rutilstruktur geben Fleury und Loudon /19/ folgenden Wechselwirkungs-Hamiltonoperator an:

$$\begin{aligned} \tilde{H}_{\text{eff}} = & \frac{1}{\hbar^2} \sum_{\vec{s}, \vec{R}} \left[B'_1 (E_{\vec{s}}^x E_{\vec{R}}^x + E_{\vec{s}}^y E_{\vec{R}}^y) + B'_2 E_{\vec{s}}^z E_{\vec{R}}^z + B'_3 (E_{\vec{s}}^x E_{\vec{R}}^y + E_{\vec{s}}^y E_{\vec{R}}^x) \sigma_{\vec{s}}^x \sigma_{\vec{R}}^y + \right. \\ & + B'_4 ((E_{\vec{s}}^y E_{\vec{R}}^z + E_{\vec{s}}^z E_{\vec{R}}^y) \sigma_{\vec{s}}^y \sigma_{\vec{R}}^z + (E_{\vec{s}}^x E_{\vec{R}}^z + E_{\vec{s}}^z E_{\vec{R}}^x) \sigma_{\vec{s}}^x \sigma_{\vec{R}}^z) + \\ & + B'_5 ((E_{\vec{s}}^y E_{\vec{R}}^z - E_{\vec{s}}^z E_{\vec{R}}^y) \sigma_{\vec{s}}^y \sigma_{\vec{R}}^z + (E_{\vec{s}}^x E_{\vec{R}}^z - E_{\vec{s}}^z E_{\vec{R}}^x) \sigma_{\vec{s}}^x \sigma_{\vec{R}}^z) \left. \right] \times \\ & \times [\tilde{S}_{\vec{R}}^+ \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{s}}^- + \tilde{S}_{\vec{R}}^- \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{s}}^+ + \eta \tilde{S}_{\vec{R}}^z \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{s}}^z] . \end{aligned} \quad (3.1)$$

Die Summe $\vec{R}$ läuft über die Ionen eines Untergitters und $\vec{\delta}$ über die nächsten Nachbarn auf dem anderen Untergitter, $\sigma_{\vec{\delta}}^{\alpha} = \text{sign } \delta^{\alpha}$ und die Größe η ist ein von der Symmetrie erlaubter Anisotropiefaktor für das tetragonale Gitter. Aus den Messungen von Fleury und Loudon /19/ geht hervor, daß die Ramanstreuung an Zweimagnonen symmetrisch in den Polarisationsrichtungen ist, so daß der Faktor B_5' klein ist. Man kann den Hamiltonoperator $\tilde{H}_{\text{eff}}$ zur Abkürzung auch in Tensorform schreiben:

$$\tilde{H}_{\text{eff}} = \frac{1}{\hbar^2} \sum_{\substack{\vec{\delta}, \vec{R} \\ \alpha, \beta, \gamma, \delta}} E_i^{\alpha} E_s^{\beta} B(\vec{\delta})_{\alpha\beta\gamma\delta} \tilde{S}_R^{\gamma} \tilde{S}_{R+\vec{\delta}}^{\delta} \quad (3.2)$$

3.2. Der Streuquerschnitt für Zweimagnonen-Ramanstreuung

Der Hamiltonoperator für das wechselwirkende System Photonen - magnetische Ionen lautet:

$$\tilde{H}_{\text{tot}} = \tilde{H}_P + \tilde{H}_m + \tilde{H}_{\text{eff}} \quad (3.3)$$

Der Hamiltonoperator des Spinsystems ist durch Gleichung (2.1) gegeben, der effektive Wechselwirkungs-Hamiltonoperator durch die Gleichung (3.1) und der Hamiltonoperator des Strahlungsfeldes durch:

$$\tilde{H}_P = \sum_{\vec{p}, \alpha} \hbar \omega_{\vec{p}} (\tilde{a}_{\vec{p}, \alpha}^+ \tilde{a}_{\vec{p}, \alpha} + \frac{1}{2}) \quad (3.4)$$

In erster Ordnung der Störungsrechnung ist die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für den Übergang vom Zustand $|i\rangle$ in den Zustand $|f\rangle$ des Gesamtsystems gegeben durch:

$$W_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | \tilde{H}_{\text{eff}} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i) \quad (3.5)$$

Der Operator für die elektrische Feldstärke in (3.1) ist in zweiter Quantisierung gegeben durch, z.B. /28/:

$$\vec{E}(t) = i \sum_{\vec{p}, \alpha} \left(\frac{2\pi\hbar\omega_{\vec{p}} n(\omega)}{L^3} \right)^{\frac{1}{2}} \vec{\epsilon}_{\vec{p}, \alpha} \left(\tilde{a}_{\vec{p}, \alpha}(t) e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}} - \tilde{a}_{\vec{p}, \alpha}^+(t) e^{-i\vec{p} \cdot \vec{r}} \right) \quad (3.6)$$

$\tilde{a}_{\vec{p}\alpha}^-(t)$ und $\tilde{a}_{\vec{p}\alpha}^+(t)$ sind der Vernichtungs- und Erzeugungsoperator für ein Photon mit Wellenvektor $\vec{p}$ und Polarisation α . L ist die Kantenlänge des Kubus, der als Periodizitätsvolumen eingeführt wird, und $n(\omega)$ der Brechungsindex bei der Frequenz ω . In (3.1) geht das Produkt der Operatoren für die Feldstärke des eingestrahnten und gestreuten Lichtes ein. Von den verschiedenen Produkten der Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren gibt nur $\tilde{a}_{\vec{p}\alpha}^-\tilde{a}_{\vec{q}\beta}^+$ einen Beitrag zur Ramanstreuung. Berücksichtigt man dies in (3.5) und beachtet, daß die Zustände des Gesamtsystems als Produkte von Eigenfunktionen von $\tilde{H}_p$ und $\tilde{H}_m$ angesetzt werden, erhält man für die Übergangswahrscheinlichkeit:

$$\left(\frac{2\pi\hbar}{L^3}\right)^2 n_i \omega_i n_s \omega_s N_i \left| \sum_{\substack{\alpha, \beta, \gamma, \delta \\ \alpha, \beta, \gamma, \delta}} \langle f_m | B(\vec{\delta})_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} \epsilon_i^{\alpha} \epsilon_s^{\beta} \tilde{S}_R^{\gamma} \tilde{S}_R^{\delta} | i_m \rangle \right|^2 \delta(E_m^f - E_m^i - \hbar\omega) \quad (3.7)$$

$\hbar\omega = \hbar\omega_i - \hbar\omega_s$ ist die Energiedifferenz von eingestrahltm und gestreutem Photon, N_i die Anzahl der pro Zeiteinheit in den Kristall einfallenden Photonen und $|f_m\rangle$ und $|i_m\rangle$ End- und Anfangszustand des Spinsystems. Vom elektromagnetischen Feld sind in (3.7) nur noch die Energieverschiebung $\hbar\omega$ und die Polarisationsrichtungen $\vec{\epsilon}_i$ und $\vec{\epsilon}_s$ zurückgeblieben. Für Stokes'sche Streuung ist $\hbar\omega > 0$ und damit $E_m^f > E_m^i$.

Die Gesamtwahrscheinlichkeit für den Übergang nach $|f_m\rangle$ ergibt sich aus (3.7) und der Wahrscheinlichkeit dafür, daß der Anfangszustand $|i_m\rangle$ besetzt ist. Diese Wahrscheinlichkeit ist gleich dem Erwartungswert des Dichteoperators $\tilde{\rho}$ im Zustand $|i_m\rangle$. Zum Schluß wird noch über alle Endzustände des Systems Photonen - Magnonen summiert. Diese Summation ist eine doppelte, nämlich über alle Spinwellenzustände, die die Energieerhaltungsbedingung $E_m^f - E_m^i = \hbar\omega$ für ein Energieintervall $(\hbar\omega, \hbar\omega + \hbar\Delta\omega)$ erfüllen und über die Freiheitsgrade des elektromagnetischen Feldes. Die Zahl der Feldzustände im Volumen L^3 mit einer bestimmten Polarisation, einem Photonenimpuls im Raumwinkel $d\Omega$ und einer Energie im Intervall $(\hbar\omega, \hbar\omega + \hbar\Delta\omega)$ ist

$$dN = \frac{L^3 \omega^2 d\omega d\Omega n^3}{(2\pi c)^3}.$$

Damit ist die Anzahl der pro Zeiteinheit in den Raumwinkel $d\Omega$ und das Energieintervall $\hbar\Delta\omega_s$ um $\hbar\omega_s$ gestreuten Photonen, bezogen auf ein pro Zeiteinheit und Kristallvolumen L^3 einfallendes Photon gegeben durch:

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega_s d\Omega} = \frac{n_i \omega_i n_s^4 \omega_s^3 \hbar^2}{c^3 2\pi} \sum_{i \neq j} g(E_m^i) |\langle f_m | \tilde{P} | i_m \rangle|^2 \delta(E_m^i - E_m^f + \hbar\omega), \quad (3.8)$$

wobei die Summe nur noch über das Spinsystem läuft. Der Operator $\tilde{P}$ ist durch die folgende Gleichung erklärt:

$$\tilde{P} = \frac{1}{\hbar^2} \sum_{\vec{s}, \vec{R}_i} B_i \chi_i(\vec{s}) \left[\tilde{S}_R^+ \tilde{S}_{R+\vec{s}}^- + \tilde{S}_R^- \tilde{S}_{R+\vec{s}}^+ + \eta \tilde{S}_R^z \tilde{S}_{R+\vec{s}}^z \right]. \quad (3.9)$$

Diese Schreibweise erhält man aus (3.1), wenn man die Glieder, aus einem Grund, der später ersichtlich wird, folgendermaßen zusammenfaßt:

$$\begin{aligned} B_1 &= B'_1 (\epsilon_i^x \epsilon_s^x + \epsilon_i^y \epsilon_s^y) + B'_2 \epsilon_i^z \epsilon_s^z \\ B_2 &= B'_3 (\epsilon_i^x \epsilon_s^y + \epsilon_i^y \epsilon_s^x) \\ B_3 &= B'_4 (\epsilon_i^y \epsilon_s^z + \epsilon_i^z \epsilon_s^y) \\ B_4 &= B'_4 (\epsilon_i^x \epsilon_s^z + \epsilon_i^z \epsilon_s^x). \end{aligned} \quad (3.10)$$

Die $\chi_i(\vec{s})$ sind folgendermaßen definiert:

$$\begin{aligned} \chi_1(\vec{s}) &= 1 & \chi_2(\vec{s}) &= \sigma^x(\vec{s}) \sigma^y(\vec{s}) \\ \chi_3(\vec{s}) &= \sigma^y(\vec{s}) \sigma^z(\vec{s}) & \chi_4(\vec{s}) &= \sigma^x(\vec{s}) \sigma^z(\vec{s}). \end{aligned} \quad (3.11)$$

Definiert man nun die Korrelationsfunktion $F_{\tilde{P}\tilde{P}}(t, t') = \langle \tilde{P}(t) \tilde{P}(t') \rangle$, dann ist (3.8) bis auf den Vorfaktor gerade die Spektraldichte $F_{\tilde{P}\tilde{P}}(\omega)$, siehe z.B. Zubarev /8/. Nach Gleichung (1.25) ist die Spektraldichte im wesentlichen durch den Sprung der Green'schen Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}}(\omega)$ auf der reellen Achse gegeben. Die Aufgabe, den Streuquerschnitt zu berechnen, ist also äquivalent damit, die Green'sche Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}}(\omega)$ zu finden. Da die Reihenfolge der Operatoren in der Korrelationsfunktion wichtig ist, -es gilt z. B. die Beziehung $F_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega) = e^{i\hbar\omega} F_{\tilde{B}\tilde{A}}(\omega)$, wenn $F_{\tilde{B}\tilde{A}}(t', t) = \langle \tilde{B}(t') \tilde{A}(t) \rangle$, und damit ein anderer Zusammenhang zwischen $G_{\tilde{A}\tilde{B}}(\omega)$ und $F_{\tilde{B}\tilde{A}}(\omega)$ als in (1.25), siehe Zubarev, -und da hier keine natürliche Unterscheidung der Operatoren wie in den letzten Abschnitten gegeben ist, wird im folgenden der zweite Operator mit $\tilde{P}'$ bezeichnet.

Der Streuquerschnitt wird in der Spinwellennäherung berechnet. Dazu werden die Spinoperatoren in $\tilde{F}$ durch die Holstein-Primakoff-Transformation (2.2) in die untergitterbezogenen Boseoperatoren $\tilde{a}$ und $\tilde{b}$ übergeführt. Die Wurzel in der Transformation wird entwickelt und durch Fouriertransformation wird zum reziproken Gitter übergegangen. Da die Summe über $\vec{R}$ in (3.9) nur die Operatoren betrifft, kann sie sofortausgeführt werden. Man erhält somit für die Produkte der Spinoperatoren bis zu Gliedern der Ordnung $1/s$

$$\begin{aligned} \frac{1}{s} \sum_{\vec{R}} \tilde{S}_{\vec{R}}^+ \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{\delta}}^- &= 2n^2 \left[\sum_{\vec{k}} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{\delta}} \tilde{a}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{k}}^- - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{4sN} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}''} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}} (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'} \tilde{a}_{\vec{k}''} \tilde{b}_{\vec{k}}^- + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}'} \tilde{b}_{\vec{k}''} \tilde{a}_{\vec{k}}^-) \Delta(\vec{k}'' - \vec{k}' - \vec{k}'' + \vec{k}) \right] \\ \frac{1}{s} \sum_{\vec{R}} \tilde{S}_{\vec{R}}^- \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{\delta}}^+ &= 2n^2 \left[\sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{4sN} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}''} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\delta}} (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'}^+ \tilde{a}_{\vec{k}''} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}'}^+ \tilde{b}_{\vec{k}''} \tilde{a}_{\vec{k}}^+) \Delta(\vec{k}'' + \vec{k}' - \vec{k} - \vec{k}'') \right] \\ \frac{1}{s} \sum_{\vec{R}} \tilde{S}_{\vec{R}}^z \tilde{S}_{\vec{R}+\vec{\delta}}^z &= -n^2 sN + n^2 \left[\sum_{\vec{k}} (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^-) - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{sN} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}''} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{\delta}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}'} \tilde{a}_{\vec{k}''} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}'} \tilde{b}_{\vec{k}''} \right]. \end{aligned} \quad (3.12)$$

Für das Δ -Symbol gilt $\Delta(0) = 1$ und $\Delta(x) = 0$ für $x \neq 0$. Zur konsistenten Durchführung der Rechnung wurde in 2.5.2 ein Größenordnungsparameter λ eingeführt. Wie man bei der Entwicklung der Wurzel sofort sieht, kann man $1/s$ mit λ identifizieren, so daß die Einführung eines eigenen Parameters nicht notwendig ist.

Nachfolgend wird in (3.9) über $\vec{\delta}$, die Abstandsvektoren zwischen zweitnächsten Nachbarn im tetragonal primitiven Gitter, summiert. Wegen $\sum_{\vec{\delta}} \chi_{2,3,4}(\vec{\delta}) = 0$ gibt das von $\vec{\delta}$ unabhängige Glied in der letzten Zeile von (3.12) nur für $\chi_1(\vec{\delta})$ einen Beitrag. Man erhält für die verschiedenen Summen über $\vec{\delta}$ folgende Ausdrücke:

$$\begin{aligned}
 \sum_{\vec{s}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{s}} \chi_1(\vec{s}) &= \cos(k_{x2} \frac{a}{2}) \cos(k_{y2} \frac{a}{2}) \cos(k_{z2} \frac{c}{2}) z_2 = \phi_1(\vec{k}) \quad (\Gamma) \\
 \sum_{\vec{s}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{s}} \chi_2(\vec{s}) &= -\sin(k_{x2} \frac{a}{2}) \sin(k_{y2} \frac{a}{2}) \cos(k_{z2} \frac{c}{2}) z_2 = \phi_2(\vec{k}) \quad (M) \\
 \sum_{\vec{s}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{s}} \chi_3(\vec{s}) &= -\cos(k_{x2} \frac{a}{2}) \sin(k_{y2} \frac{a}{2}) \sin(k_{z2} \frac{c}{2}) z_2 = \phi_3(\vec{k}) \quad (R) \\
 \sum_{\vec{s}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{s}} \chi_4(\vec{s}) &= -\sin(k_{x2} \frac{a}{2}) \cos(k_{y2} \frac{a}{2}) \sin(k_{z2} \frac{c}{2}) z_2 = \phi_4(\vec{k}) \quad (R)
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

Die erste Gleichung wurde aus (2.17) und (2.18) übernommen und der Vollständigkeit halber noch einmal angeführt. In jeder Zeile ist angegeben, für welche Symmetriepunkte der BZ aus Abb. 3 der Geometriefaktor den Wert 1 annimmt.

Den Ausgangspunkt für das Folgende bildet die Green'sche Funktion $\langle \tilde{P}(t); \tilde{P}'(t') \rangle$. Der Operator $\tilde{P}'$ geht bei der Berechnung der Green'schen Funktion nur im Mittelwert des Kommutators mit $\tilde{P}$ ein, so daß er zunächst als freier Parameter aufgefaßt und erst wenn nötig spezialisiert wird. Auf Grund der Linearität der Green'schen Funktion zerfällt $\langle \tilde{P}(t); \tilde{P}'(t') \rangle$ bei der Entwicklung des Operators $\tilde{P}(t)$ in eine nach Potenzen von $1/s$ geordnete Reihe von Green'schen Funktionen. Im folgenden wird zunächst der Fall der freien Spinwellen untersucht, was der Mitnahme aller Glieder proportional zu $(1/s)^0$ in der Entwicklung der Wurzel entspricht, und dann der Fall der wechselwirkenden Spinwellen, wobei alle Glieder der Ordnung $1/s$ mitgenommen werden.

3.2.1. Der Fall der freien Spinwellen

In dieser Näherung sind nur die ersten Glieder in den eckigen Klammern in (3.12) zu berücksichtigen. Die zu untersuchende zeitabhängige Green'sche Funktion lautet somit:

$$\begin{aligned}
 G_{\tilde{P}\tilde{P}}^0(t, t') &= 2s \sum_{\vec{k}, i=1} B_i \phi_i(\vec{k}) \langle (\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{-\vec{k}} + \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{-\vec{k}}^+)(t); \tilde{P}'(t') \rangle + \\
 &+ \eta s B_1 \sum_{\vec{k}} \phi_1(\vec{k}) \langle (\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{-\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{-\vec{k}})(t); \tilde{P}'(t') \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.14}$$

Hier und im folgenden werden die Zeitargumente der Operatoren

oft in dieser abgekürzten Schreibweise ausgedrückt. Außerdem werden folgende Abkürzungen für die Operatoren verwendet:

$$\begin{aligned}\tilde{A}_{\vec{k}}(t) &= \tilde{a}_{\vec{k}}(t)\tilde{b}_{\vec{k}}(t) + \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t)\tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}(t) \\ \tilde{B}_{\vec{k}}(t) &= \tilde{a}_{\vec{k}}(t)\tilde{b}_{\vec{k}}(t) - \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t)\tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}(t) \\ \tilde{C}_{\vec{k}}(t) &= \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger}(t)\tilde{a}_{\vec{k}}(t) + \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}(t)\tilde{b}_{\vec{k}}(t).\end{aligned}\tag{3.15}$$

Damit ist folgende Bewegungsgleichung zu lösen:

$$\begin{aligned}i\hbar\frac{\partial}{\partial t} G_{\vec{F}\vec{F}'}^0(t,t') &= \hbar \delta(t-t') \sum_{\vec{k}, i \neq i'} 2sB_i \phi_i(\vec{k}) \langle [\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{F}'] \rangle + \\ &+ \sum_{\vec{k}, i \neq i'} 2sB_i \phi_i(\vec{k}) \langle [\tilde{A}_{\vec{k}}(t), \tilde{H}]; \tilde{F}'(t') \rangle + \\ &+ \eta \hbar \delta(t-t') \sum_{\vec{k}} sB_1 \phi_1(\vec{k}) \langle [\tilde{C}_{\vec{k}}, \tilde{F}'] \rangle + \\ &+ \eta \sum_{\vec{k}} sB_1 \phi_1(\vec{k}) \langle [\tilde{C}_{\vec{k}}(t), \tilde{H}]; \tilde{F}'(t') \rangle.\end{aligned}\tag{3.16}$$

Der hier einzusetzende Hamiltonoperator ist $\tilde{H}_2$ aus (2.8). H_0 gibt als Konstante keinen Beitrag und $\tilde{H}_4$ und alle anderen Glieder in der Entwicklung des Hamiltonoperators sind von der Ordnung $1/s$, die in dieser Näherung vernachlässigt werden. Im Anhang sind die Kommutatoren angegeben. Als wichtiges Ergebnis erhält man, daß das äußere Magnetfeld aus diesen Gleichungen herausfällt. Es geht in (3.16) nur noch über die Mittelwerte ein und führt dort zu einer Änderung der Spinwellenbesetzungszahlen. Für niedrige Temperaturen, Magnonen in der Nähe der Oberfläche der BZ und Feldern von einigen kOe ist diese Änderung sehr klein.

Die Kommutatoren mit $\tilde{H}_2$ in (3.16) führen zum Auftreten des Operators $\tilde{B}_{\vec{k}}(t)$. Für diesen kann wieder die Bewegungsgleichung aufgestellt werden. Dabei erhält man nun aber außer den in (3.15) definierten Operatoren keine neuen mehr. Die linearen Differentialgleichungen für die Green'schen Funktionen der Operatoren $\tilde{A}_{\vec{k}}$, $\tilde{B}_{\vec{k}}$ und $\tilde{C}_{\vec{k}}$ können wie in 1.4.1. durch Fouriertransformation bezüglich $t-t'$ in algebraische Gleichungen übergeführt werden.

Man erhält somit folgendes Gleichungssystem:

$$\begin{pmatrix} \hbar\omega & -2E(\vec{k}) & 0 \\ -2E(\vec{k}) & \hbar\omega & 2sI(\vec{k}) \\ 0 & -2sI(\vec{k}) & \hbar\omega \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \tilde{A}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle (\omega) \\ \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle (\omega) \\ \langle \tilde{C}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle (\omega) \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2\pi} \begin{pmatrix} \langle [\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \\ \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \\ \langle [\tilde{C}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

Die Größe $E(\vec{k})$ ist durch (2.9) definiert. Die Determinante

$$D_{\vec{k}}(\omega) = \hbar\omega \left[(\hbar\omega)^2 - 4W(\vec{k})^2 \right], \quad (3.18)$$

mit $W(\vec{k})$ aus Gleichung (2.13), bestimmt die Pole der Green'schen Funktionen, die bei $\pm 2W(\vec{k})$ auf der reellen Achse liegen. Die Pole bestimmen die Energien der durch den Hamiltonoperator (3.3) beschriebenen Anregungszustände des Systems Magnonen - Photonen. Zur Berechnung der Green'schen Funktionen in (3.16) und (3.17) werden die Kommutatormittelwerte benötigt. Dafür muß nun der Operator $\tilde{P}'$ spezialisiert werden. Bis zu Gliedern proportional zu $(1/s)^0$ in der Entwicklung der Wurzel ist $\tilde{P}'$ gegeben durch

$$\tilde{P}' = 2s \sum_{\vec{k}, j \neq 1} B_j \phi'_j(\vec{k}) \tilde{A}_{\vec{k}} + \eta s \sum_{\vec{k}} B_1 \phi'_1(\vec{k}) \tilde{C}_{\vec{k}}. \quad (3.19)$$

Da $\langle [\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{C}_{\vec{q}}] \rangle = 2 \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \langle \tilde{B}_{\vec{k}} \rangle$ und $\langle \tilde{B}_{\vec{k}} \rangle = 0$, verschwindet nur der Mittelwert $\langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle$ nicht, so daß auf der rechten Seite von (3.17) der Spaltenvektor $\begin{pmatrix} \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \\ \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \\ \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle \end{pmatrix}$ steht und in (3.16) die

Konstanten verschwinden. Damit lassen sich die verschiedenen Green'schen Funktionen in (3.17) sofort angeben. Für die in (3.16) allein benötigte Greenfunktion $\langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle (\omega)$ erhält man aus (3.17) beispielsweise:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle (\omega) &= \frac{(\hbar\omega)^2}{D_{\vec{k}}(\omega)} \frac{\hbar}{\pi} \left[\sum_{j \neq 1} 2s B_j \phi'_j(\vec{k}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle) + \right. \\ &\quad \left. + \eta s B_1 \phi'_1(\vec{k}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle) \right]. \end{aligned} \quad (3.20)$$

In (3.16) werden die Kommutatoren eingesetzt und die Gleichung

bezüglich $t-t'$ fouriertransformiert. Man erhält damit die Bestimmungsgleichung für die Green'sche Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(\omega)$, die mit Gleichung (1.25) die Spektraldichte $F_{\tilde{P}\tilde{P}'}(\omega)$ bestimmt und damit für $\tilde{P}=\tilde{P}'$ den Streuquerschnitt:

$$\begin{aligned} \hbar\omega G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(\omega) = & \sum_{\vec{k}, i \neq 1} 2sB_i \phi_i(\vec{k}) 2E(\vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \gg (\omega) + \\ & + \gamma \sum_{\vec{k}} sB_1 \phi_1(\vec{k}) 2sI(\vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \gg (\omega) . \end{aligned} \quad (3.21)$$

Setzt man in diese Gleichung $\ll \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \gg (\omega)$ aus (3.20) ein, erhalten die Summen über $\vec{k}$ verschiedene Produkte der Geometriefaktoren $\phi_j(\vec{k})$. Diese Summen haben eine äußerst wichtige Eigenschaft, die im folgenden immer wieder verwendet wird. Es gilt:

$$\sum_{\vec{k}} \phi_i(\vec{k}) \phi_j(\vec{k}) f(\vec{k}) = \delta_{i,j} \sum_{\vec{k}} \phi_i^2(\vec{k}) f(\vec{k}) , \quad (3.22)$$

wobei $f(\vec{k})$ eine beliebige Funktion ist, die symmetrisch bezüglich der drei Spiegelebenen $\sigma_h, \sigma_x, \sigma_y$ im $\vec{k}$ -Raum ist. Diese Spiegelebenen sind Symmetrieelemente des reziproken Gitters des tetragonal primitiven direkten Gitters, so daß insbesondere die Energie $W(\vec{k})$ und damit auch die mittleren Besetzungszahlen und die Determinante $D_{\vec{k}}(\omega)$ diese Eigenschaft haben. Aber auch $E(\vec{k})$ und $I(\vec{k})$ genügen dieser Bedingung, wovon man sich an Hand der Gleichungen (2.3) und (2.9) sofort überzeugt. Gleichung (3.22) folgt unmittelbar aus der Definition der $\phi_i(\vec{k})$ in (3.13). Das Produkt $\phi_i(\vec{k}) \phi_j(\vec{k})$ ist ein sechsfaches Produkt von sin- und cos-Funktionen. Für $i \neq j$ ist dieses Produkt antisymmetrisch bezüglich zwei der drei Symmetrieelemente $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_h$. Deshalb heben sich bei der Summation über $\vec{k}$ im Inneren der BZ die Beiträge jeweils zweier Punkte auf. Auf der Oberfläche der BZ verschwinden die entsprechenden cos-Faktoren. In diesem Fall verschwindet also die Summe über $\vec{k}$. Für $i=j$ treten die sin-Faktoren quadratisch auf, so daß die Summe einen von Null verschiedenen Wert geben kann.

Berücksichtigt man (3.22) mit (3.19) und (3.20) in (3.21), so erhält man für die Green'sche Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(\omega)$:

$$G_{\tilde{F}\tilde{F}}^0(\omega) = \frac{\hbar}{\pi} \sum_{\vec{k}, i \neq 1} (2sB_i)^2 \phi_1^2(\vec{k}) \frac{2E(\vec{k}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle)}{D_{\vec{k}}(\omega)/\hbar\omega} + \quad (3.23)$$

$$+ \frac{\hbar}{\pi} \sum_{\vec{k}} (\eta sB_1)^2 \phi_1^2(\vec{k}) \frac{2sI(\vec{k}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle)}{D_{\vec{k}}(\omega)/\hbar\omega}.$$

Es wird daran erinnert, daß die Größen B_1 nach (3.10) die Auswahlregeln für die Ramanstreuung beinhalten. Zur Spurstreuung trägt nur das zweite Glied, zu den anderen Komponenten tragen nur Glieder aus der ersten Summe von (3.23) bei. Zur Berechnung der Spektraldichte $F_{\tilde{F}\tilde{F}}(\omega)$ nach (1.25) ist der Grenzwert $\lim_{\epsilon \rightarrow 0} [(\hbar\omega + i\epsilon)^2 - (2W(\vec{k}))^2]^{-1}$ auszuwerten. Der Quotient wird wie auf Seite 34 umgeformt und der Grenzwert formal gleich

$$\frac{1}{4W_{\vec{k}}} \left[P \frac{1}{\hbar\omega - 2W_{\vec{k}}} + i\pi \delta(\hbar\omega - 2W_{\vec{k}}) - P \frac{1}{\hbar\omega + 2W_{\vec{k}}} + i\pi \delta(\hbar\omega + 2W_{\vec{k}}) \right]$$

gesetzt. P bedeutet dabei den Hauptwert. Die Spektraldichte ergibt sich damit für den Spezialfall $B_z = 0$:

$$F_{\tilde{F}\tilde{F}}(\omega) = \frac{\hbar}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \sum_{\vec{k}} \left\{ (\eta sB_1)^2 \phi_1^2(\vec{k}) \left(\frac{sI_{\vec{k}}}{W_{\vec{k}}} \right)^2 + \sum_{i \neq 1} (2sB_i)^2 \phi_1^2(\vec{k}) \left(\frac{E_{\vec{k}}}{W_{\vec{k}}} \right)^2 \right\} \times$$

$$\times \coth(\beta W_{\vec{k}}/2) [\delta(\hbar\omega - 2W_{\vec{k}}) - \delta(\hbar\omega + 2W_{\vec{k}})]. \quad (3.24)$$

Hier wurden die Mittelwerte aus (2.29) für $B_z = 0$ eingesetzt und $\tilde{F} = \tilde{F}$ gesetzt, weil es auf die Reihenfolge nicht mehr ankommt. Der Streuquerschnitt in (3.8) ist proportional zu (3.24). Bei Stokesstreuung ist $\hbar\omega > 0$ und damit gibt nur die erste δ -Funktion einen Beitrag, bei Antistokes'scher Streuung, wo $\hbar\omega < 0$, nur die zweite δ -Funktion. Das Minuszeichen ergibt in diesem Fall mit dem Vorfaktor den Bosefaktor $[e^{\beta\hbar\omega} - 1]^{-1}$.

Bei der folgenden Diskussion der Gleichung (3.24) wird polarisiertes einfallendes und analysiertes gestreutes Licht und Stokes-Streuung vorausgesetzt. Dann ist nur ein B_1 von Null verschieden. Da $\sum_{\vec{k}} \delta(\hbar\omega - W_{\vec{k}}) = \varrho(\hbar\omega)$ die Zustandsdichte für Spinwellen darstellt, ist $F_{\tilde{F}\tilde{F}}(\omega)$ eine gewichtete Zustandsdichte für Zweimagnonenzustände. Der Faktor $(E_{\vec{k}}/W_{\vec{k}})^2$ variiert für MnF_2 zwischen 23 in der Mitte und 1 auf dem Rand der BZ. Der wesentliche Faktor ist $\phi_1^2(\vec{k})$, der sich zwischen 0 und 1 ändert und

bestimmte Bereiche der BZ stark gewichtet. Welche Bereiche es bei den verschiedenen ϕ_1 sind, geht aus (3.13) hervor. Bei den drei Funktionen ϕ_2 , ϕ_3 und ϕ_4 sind dies Bereiche am Rand der BZ, wo die Zustandsdichte groß ist. Dort ändert sich $E_{\vec{k}}/W_{\vec{k}}$ nur wenig, so daß das Maximum der beobachteten Bande durch die Bedingung $\phi_1^2=1$ gegeben ist. Folglich gibt (3.13) in Verbindung mit (3.10) an, daß in den verschiedenen Streugeometrien verschiedene Bereiche der BZ bei der Zweimagnonen-Ramanstreuung beobachtet werden können. Wenn die Energie auf dem Rand der BZ Dispersion zeigt, erwartet man das Auftreten verschiedener Maxima im beobachteten Spektrum.

Der Fall der Spurstreuung ist nicht so einfach zu übersehen, weil ϕ_1^2 die Mitte der BZ stark gewichtet und zum Rand abfällt, wo die Zustandsdichte stark zunimmt. In den Abbildungen 23, 24 und 25 sind die mit (3.24) berechneten Banden für MnF_2 dargestellt. Ein wesentliches Ergebnis dieser Rechnung ist, daß die Maximumsposition unabhängig von einem äußeren Magnetfeld B_z ist. Das Magnetfeld geht nur über die Besetzungszahlen in (3.24) ein, in denen im Fall $B_z \neq 0$ der coth-Faktor durch $[1 - e^{-\beta(W_{\vec{k}} - B_z)}]^{-1} - [1 - e^{\beta(W_{\vec{k}} + B_z)}]^{-1}$ zu ersetzen ist. Somit führt die Berücksichtigung eines Magnetfeldes nur zu einer Änderung der Gestalt der beobachteten Bande.

Die einzigen temperaturabhängigen Faktoren in (3.24) sind der Stokes- und der coth-Faktor. Sie führen beide bei Temperaturerhöhung zu einer Zunahme der gestreuten Intensität, nicht jedoch zu einer Änderung des Bandenmaximums. Eine einfache Abschätzung für MnF_2 mit $W(\vec{k}) \approx 50 \text{ cm}^{-1}$ auf dem Rand der BZ liefert im Temperaturbereich von 0 bis 40K eine Zunahme der Intensität der Bande auf Grund dieser beiden Faktoren um den Faktor 1.7. Die beobachtete Abnahme von Maximumsintensität und Ramanverschiebung sind eine Folge der spinwellenwechselwirkung, auf die im nächsten Abschnitt eingegangen wird.

3.2.2. Ramanstreuquerschnitt bei Wechselwirkung der Spinwellen

In diesem Abschnitt wird nur mehr der Fall $j \neq 1$ behandelt. Die Rechnung für freie Spinwellen ergab eine sehr breite, im wesentlichen gestaltlose Bande zwischen 20 und 100 cm^{-1} . Die Berücksichtigung der Wechselwirkung hat hauptsächlich nur eine Verbreiterung der Bande zur Folge, so daß die für freie Spinwellen berechneten Spektren eine erste Näherung für die experimentell beobachteten sind. Im Experiment kann jedoch in den Spurstreugeometrien keine Zweimagnonenstreuung beobachtet werden, so daß dieser Fall nicht weiter betrachtet wird. Die Theorie des folgenden Abschnitts kann jedoch bei Bedarf auf diesen Fall ausgedehnt werden.

Es werden alle jene Glieder im Hamiltonoperator und im Operator $\tilde{F}$ mitgenommen, die in der Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation bis zur Ordnung $1/s$ auftreten. Das bedeutet, daß im Hamiltonoperator nun auch $\tilde{H}_4$ aus (2.22) und in $\tilde{F}$ alle in (3.12) angeschriebenen Glieder berücksichtigt werden. Somit ist $\tilde{F}$, statt durch (3.19), nun durch die folgende Gleichung gegeben:

$$\begin{aligned} \tilde{F}(t) = & \sum_{\vec{k}, j \neq 1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \left\{ \tilde{A}_{\vec{k}}(t) - \frac{\lambda}{4sN} \sum_{\vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''} \tilde{F}(\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''; t) \right\} + \\ & + \eta \sum_{\vec{k}} sB_1 \phi_1(\vec{k}) \tilde{C}_{\vec{k}}(t) + O\left(\frac{1}{s^2}\right) \end{aligned} \quad (3.25)$$

mit

$$\begin{aligned} \tilde{F}(1, 2, 3, 4; t) = & (\tilde{b}_1 \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3 \tilde{a}_4 + \tilde{a}_1 \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_3 \tilde{b}_4)(t) \Delta(4+3-2-1) + \\ & + (\tilde{a}_1^+ \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_3 \tilde{b}_4 + \tilde{b}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3 \tilde{a}_4)(t) \Delta(4+1-2-3) + \\ & + \eta 2(\tilde{a}_2^+ \tilde{a}_{4+2} \tilde{b}_3^+ \tilde{b}_{4+3})(t) \Delta(4-1) . \end{aligned} \quad (3.26)$$

Die Zahlen im Index stehen wie in (2.22) für verschiedene Wellenzahlvektoren. Außerdem wurde hier die verkürzte Schreibweise für die Zeitabhängigkeit verwendet.

Zur Vereinfachung wird im folgenden $B_z=0$ gesetzt. Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, daß die Maximumsposition von B_z unbe-

einflußt bleibt. Daran ändert sich auch bei Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen nichts. Die Einschränkung hat $\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle = \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle$ zur Folge und führt damit zu einfacheren Ausdrücken. Weiter wird wieder ein Größenordnungsparameter λ eingeführt, der als Faktor bei allen Gliedern auftritt, die in der Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation proportional zu $1/s$ sind. Wie bereits erwähnt, ist diese Einführung eigentlich unnötig, weil $1/s$ selbst als dieser Parameter angesehen werden kann. Jedoch tritt $1/s$ nicht stets explizit auf, z.B. in $\tilde{H}_4$, so daß in späteren Formeln eine Zusammenfassung von Gliedern gleicher Größenordnung schwierig wäre.

Mit den Abkürzungen aus (3.15) lautet die zu untersuchende Green'sche Funktion für $j \neq 1$:

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}'}(t, t') = \sum_{\vec{k}, j \neq 1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \ll \tilde{A}_{\vec{k}}(t) - \frac{\lambda}{4sN} \sum_{\vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''} \tilde{F}(\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''; t); \tilde{P}'(t') \gg, \quad (3.27)$$

die man mit $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(t, t')$ aus (3.14) auch wie folgt schreiben kann:

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}'}(t, t') = G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(t, t') - \frac{\lambda}{4sN} \sum_{\substack{\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}''' \\ j \neq 1}} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \ll \tilde{F}(\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''; t); \tilde{P}'(t') \gg.$$

Das sind die ersten beiden Glieder der bereits erwähnten Entwicklung der Green'schen Funktion nach steigenden Potenzen von $1/s$. Allerdings kann das zweite Glied nicht getrennt behandelt und das Ergebnis von 3.3.1. für $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^0(t, t')$ übernommen werden, weil der Operator $\tilde{P}'$ zur Berechnung der Kommutatormittelwerte entwickelt werden muß und deshalb in den verschiedenen Näherungen durch unterschiedliche Ausdrücke gegeben ist. In der durchzuführenden Näherung hat man $\tilde{P}'$ aus (3.26) statt aus (3.19) zu verwenden.

Neben $\langle [\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle$ und $\langle [\tilde{C}_{\vec{k}}, \tilde{P}'] \rangle$ erhält man in der Bewegungsgleichung auch $\langle [\tilde{F}(\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', \vec{k}'''), \tilde{P}'] \rangle$. Setzt man hier $\tilde{P}'$ aus (3.26) ein, so heben sich die zusätzlich auftretenden, nichtverschwindenden Mittelwerte bis auf das Glied $\langle [\tilde{F}(\vec{p}, \vec{q}, \vec{r}, \vec{s}), \tilde{F}(\vec{p}, \vec{q}, \vec{r}, \vec{s})] \rangle$ gegenseitig auf. Dieses Glied ist jedoch von höherer Ordnung und wird deshalb vernachlässigt. Auch bei Wechselwirkung der Spinwellen tritt deshalb in der Bewegungsgleichung für $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}$,

kein konstantes Glied auf. Die Bewegungsgleichung lautet damit:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^O(t, t') = \sum_{\vec{k}, j=1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \ll [\tilde{A}_{\vec{k}}(t), \tilde{H}_2 + \lambda \tilde{H}_4]; \tilde{P}'(t') \gg + \quad (3.28)$$

$$- \frac{\lambda}{4sN} \sum_{\substack{j=1 \\ \vec{k}, \vec{k}', \vec{k}''}} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \ll [\tilde{F}(\vec{k}, \vec{k}', \vec{k}'', t), \tilde{H}_2]; \tilde{P}'(t') \gg.$$

Das erste Glied in der ersten Zeile ist die Bewegungsgleichung für $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^O(t, t')$ in der Näherung freier Spinwellen. Die anderen Glieder berücksichtigen die Wechselwirkung der Magnonen.

Die Ausrechnung der entsprechenden Kommutatoren bietet keine Schwierigkeiten, ist jedoch umfangreich. Sie führt auf vierfache Produkte von Untergitteroperatoren und damit auf Dreiteilchen-Greenfunktionen. Diese werden wie in früheren Fällen auf Green'sche Funktionen niedrigerer Ordnung zurückgeführt, indem alle möglichen Operatormittelwerte zweifacher Produkte gebildet werden. Im Anhang ist dieses Programm durchgeführt. Die Gleichung (3.28) geht damit über in

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G_{\tilde{P}\tilde{P}'}^O(t, t') = \left\{ 1 - \frac{\lambda}{2sN} \sum_{\vec{p}} [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle + \frac{\eta}{2} \sigma(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle)] \right\} \times$$

$$\times \sum_{\vec{k}, j=1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) 2E_{\vec{k}} \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{P}'(t') \gg +$$

$$(3.29) \quad + \sum_{\vec{k}, j=1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \left\{ \frac{\lambda}{N} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{P}'(t') \gg + \right.$$

$$+ \frac{\lambda}{N} \sum_{\vec{p}} [F(\vec{k}, \vec{p}) - I(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle)] \ll \tilde{B}_{\vec{p}}(t); \tilde{P}'(t') \gg] -$$

$$- \frac{\lambda}{sN} \sum_{\substack{j=1 \\ \vec{k}, \vec{p}}} 2sB_j \phi_j(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle) sI(\vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{P}'(t') \gg.$$

Die Größen G und H wurden bereits in (2.33) angegeben, F und die Größe K , die später auftritt, sind wie folgt definiert:

$$F(\vec{k}, \vec{p}) = I(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle) + I(\vec{k} - \vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle) \quad (3.30)$$

$$K(\vec{k}, \vec{p}) = I_{\vec{k}} (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle) + (I_0 + L_{\vec{k}} + L_{\vec{p}} - L_0 - L_{\vec{k}-\vec{p}}) (\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle).$$

Wie in (2.33) ist die erste Variable diejenige, die bei den Mittelwerten auftritt.

Im folgenden werden einige wichtige Eigenschaften der Geometriefaktoren $\phi_j(\vec{k})$ benötigt, die in den folgenden Gleichungen zusammengestellt sind. Die bereits früher benötigte Orthogonalitätsbeziehung (3.22) gehört mit hierher.

Für eine Funktion $f(\vec{k})$, die symmetrisch bezüglich der drei Spiegelebenen σ_x , σ_y und σ_h im $\vec{k}$ -Raum ist, gilt

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) f(\vec{k}) = 0 + O(1/N^{\frac{1}{3}}) \quad \text{für } j = 2, 3, 4. \quad (3.31)$$

Man überlegt sich diese Gleichung sofort anhand der Ausdrücke für die $\phi_j(\vec{k})$ aus Gleichung (3.13). Für innere Punkte der BZ heben sich die Beiträge je zweier Punkte zur Summe auf. Das liegt daran, daß der Sinus eine ungerade Funktion ist. Auf der Oberfläche der BZ gibt es jedoch Punkte, deren Beiträge nicht von anderen Punkten kompensiert werden. Für $j=2$ sind es z.B. alle Punkte der BZ mit dem $\vec{k}$ -Vektor $(1, 1, k_z)$. Nimmt man eine kubische BZ an, ist die Anzahl dieser Punkte $N^{\frac{1}{3}}$, wenn N die Gesamtzahl der Punkte ist. Damit erhält man die Gleichung (3.31). Beispiele für die Funktion $f(\vec{k})$ wurden bei Gleichung (3.22) angegeben. Als weitere Gleichung wird im folgenden benötigt:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) I(\vec{k}-\vec{p}) f(\vec{k}) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) f(\vec{k}) \phi_j(\vec{p}) \quad \text{für } j=1, 2, 3, 4. \quad (3.32)$$

Diese Identität gilt unter der Voraussetzung, daß die Wechselwirkung zwischen Ionen auf verschiedenen Untergittern auf nächste Nachbarn beschränkt wird. In diesem Fall gilt

$I(\vec{k}-\vec{p}) = I_0 \sigma(\vec{k}-\vec{p})$, mit $\sigma(\vec{k})$ aus Gleichung (2.18). Mit Hilfe des Additionstheorems für die cos-Funktion kann $\sigma(\vec{k}-\vec{p})$ in 8 Glieder zerlegt werden:

$$\sigma(\vec{k}-\vec{p}) = \sum_{i=1,4} [\phi_i(\vec{k}) \phi_i(\vec{p}) + \bar{\phi}_i(\vec{k}) \bar{\phi}_i(\vec{p})].$$

Die Funktionen $\bar{\phi}_i$ gehen aus den Funktionen ϕ_i in (3.13) durch die Vertauschung der cos- und sin-Funktionen hervor. Man überlegt sich leicht, daß $\sum_{\vec{k}} \phi_i(\vec{k}) \bar{\phi}_j(\vec{k}) f(\vec{k})$ für alle i und j verschwindet. Mit (3.22) folgt dann sofort (3.32).

Die der Gleichung (3.32) entsprechende Summe über die ferromagnetischen Austauschintegrale verschwindet für $j \neq 1$:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) I(\vec{k}-\vec{p}) f(\vec{k}) = 0 + O(1/N^{\frac{1}{3}}) \quad \text{für } j = 2, 3, 4. \quad (3.33)$$

Um dies zu zeigen, wird nach (2.17) für $L(\vec{k}-\vec{p})$ geschrieben:

$$L(\vec{k}-\vec{p}) = z_1 L_1 \tau(\vec{k}-\vec{p}) + z_3 L_3 \vartheta(\vec{k}-\vec{p}) .$$

Die trigonometrischen Faktoren in τ und ϑ werden zerlegt. Man erhält z.B. für $\tau(\vec{k}-\vec{p})$:

$$\tau(\vec{k}-\vec{p}) = \cos(k_z c) \cos(p_z c) + 2 \sin(k_z \frac{c}{2}) \cos(k_z \frac{c}{2}) \sin(p_z c) .$$

Das erste Glied rechts hat die für $f(\vec{k})$ in (3.31) geforderte Eigenschaft, so daß es für $j \neq 1$ keinen Beitrag liefert. Die Summe über das zweite Glied von τ verschwindet exakt, wenn $j=1,2$ und für die beiden Glieder in ϑ , falls $j=1,3$ bzw. $j=1,4$. In den anderen Fällen bleiben Punkte auf der Oberfläche übrig, deren Beiträge nicht kompensiert werden. Es sind dies für τ und $j=3$ z.B. die Punkte mit den Koordinaten $(1, k_y, k_z)$, wobei $k_{y,z} \neq 1$. Die Anzahl dieser Punkte ist grob gesprochen gleich $N^{2/3}$, so daß im allgemeinen Fall Gleichung (3.33) folgt. Als letzte Eigenschaft der Geometriefaktoren wird die Gleichung

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}-\vec{p}) f(\vec{k}) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_1(\vec{k}) f(\vec{k}) \phi_j(\vec{p}) + O(1/N^{2/3}) \quad (3.34)$$

für $j=1,2,3,4$

angeführt. Wie bereits mehrfach verwendet, werden die trigonometrischen Funktionen in $\phi_j(\vec{k}-\vec{p})$ zerlegt. Man erhält z.B. für $\phi_2(\vec{k}-\vec{p})$:

$$\phi_2(\vec{k}-\vec{p}) = \phi_1(\vec{k}) \phi_2(\vec{p}) - \phi_3(\vec{k}) \phi_4(\vec{p}) +$$

+ Glieder mit $i \leftrightarrow j$ + Glieder mit $\phi_i \rightarrow \bar{\phi}_i$.

Mit einer ähnlichen Argumentation wie in (3.33) folgt (3.34). Mit Hilfe der Gleichungen (3.22) und (3.31) bis (3.34) läßt sich (3.29) wesentlich vereinfachen. Mit der Abkürzung

$$\langle \alpha \rangle = 1 - \frac{\lambda}{2sN} \sum_{\vec{p}} \left[\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle + \frac{\eta}{2} \sigma(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle) \right] \quad (3.35)$$

findet man:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G_{\tilde{F}\tilde{F}'}(t, t') = \langle \alpha \rangle \sum_{\vec{k}, j+1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) 2\hat{E}(\vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{F}'(t') \gg + \quad (3.36)$$

$$+ \lambda \frac{I(0)}{N} \sum_{\vec{p}, j+1} \phi_j^2(\vec{p}) [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle] \sum_{\vec{k}} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{F}'(t') \gg.$$

Die Definition der renormierten Größe $\hat{E}(\vec{k})$ wurde aus (2.32) übernommen. In der ersten Zeile wurde ein Glied höherer Ordnung hinzugenommen und zwar das Produkt aus dem Glied proportional zu λ in $\langle \alpha \rangle$ und der dritten Zeile von Gleichung (3.29). Dieses Glied geht auf den Kommutator $[\tilde{F}(1234), \tilde{H}_4]$ zurück, der von der Ordnung $(1/s)^2$ ist und deshalb nicht in (3.29) auftrat.

Es ist interessant, sich die Entstehung der einzelnen Terme in (3.36) zu vergegenwärtigen. Das Glied proportional zu λ in $\langle \alpha \rangle$ ist im wesentlichen eine Folge des Kommutators $[\tilde{F}(1234), \tilde{H}_2]$. Es hat seine Ursache in der Entwicklung des Operators $\tilde{F}$ nach Spinwellenoperatoren bis zur Ordnung $1/s$. Wie im folgenden zu sehen ist, führt $\langle \alpha \rangle$ lediglich zu einer Temperaturabhängigkeit der Intensität, genauer zu einer Abnahme der Maximumsintensität bei steigender Temperatur. Aus der Diskussion des Falles freier Spinwellen ist ersichtlich, daß ein solcher Faktor notwendig ist, um die Zunahme auf Grund des Stokes- und coth-Faktors zu unterdrücken. Die Renormierung von $\hat{E}(\vec{k})$ hat seine Ursache in der Entwicklung des Hamiltonoperators bis $\tilde{H}_4$. Dies führt zur Temperaturabhängigkeit der Maximumsposition. Auch die zweite Zeile, deren Folge später etwas klarer wird, hängt mit dem Auftreten von $\tilde{H}_4$ zusammen.

Die Gleichung (3.36) zeigt, daß die Berechnung von $G_{\tilde{F}\tilde{F}'}(t, t')$, wie im Fall der freien Spinwellen, auf die Bestimmung der Green'schen Funktion $\ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{F}'(t') \gg$ hinausläuft, was zunächst geschehen soll.

Die Bewegungsgleichung für diese Greenfunktion lautet:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \ll \tilde{B}_{\vec{k}}(t); \tilde{F}'(t') \gg = \hbar \delta(t-t') \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{F}'] \rangle + \ll [\tilde{B}_{\vec{k}}(t), \tilde{H}_2 + \lambda \tilde{H}_4]; \tilde{F}'(t') \gg$$

Der Kommutator mit $\tilde{H}_2$ und die Linearisierung der Green'schen Funktionen höherer Ordnung führen wie im wechselwirkungsfreien

Fall auf die Greenfunktionen $\langle\langle \tilde{A}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle$ und $\langle\langle \tilde{C}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle$, für die wieder die Bewegungsgleichungen aufgestellt werden. Nach Fouriertransformation bezüglich $t-t'$ erhält man ein zu (3.17) analoges algebraisches Gleichungssystem:

$$(3.37) \quad \begin{pmatrix} \hbar\omega & -2\hat{E}_{\vec{k}} & 0 \\ -2\hat{E}_{\vec{k}} & \hbar\omega & 2s\hat{I}_{\vec{k}} \\ 0 & -2s\hat{I}_{\vec{k}} & \hbar\omega \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle\langle \tilde{A}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \\ \langle\langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \\ \langle\langle \tilde{C}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\hbar}{2\pi} \langle[\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle + \\ + \frac{\lambda}{N} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \rangle \sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p}) \langle\langle \tilde{B}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \\ \frac{\hbar}{2\pi} \langle[\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle + \frac{\lambda}{N} \sum_{\vec{p}} F(\vec{k}, \vec{p}) \langle\langle \tilde{A}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) + \\ + \frac{\lambda}{N} \sum_{\vec{p}} K(\vec{k}, \vec{p}) \langle\langle \tilde{C}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \\ \frac{\hbar}{2\pi} \langle[\tilde{C}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle + \\ + \frac{\lambda}{N} \langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle \sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p}) \langle\langle \tilde{B}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \end{pmatrix}$$

Die Koeffizientenmatrix stimmt formal mit derjenigen in (3.17) überein. Der einzige Unterschied besteht im Auftreten der temperaturabhängigen Größen in (3.37). Auf der rechten Seite gehen die zu bestimmenden Green'schen Funktionen noch einmal ein. Da in diesen Gliedern jedoch über die BZ summiert wird, hängt die rechte Seite tatsächlich nur von $\vec{k}$, T und ω ab. Allerdings führen diese Glieder zu komplizierteren Lösungen. Mit der Determinante

$$\hat{D}_{\vec{k}}(\omega) = \hbar\omega \left[(\hbar\omega)^2 - 4\hat{W}(\vec{k})^2 \right] \quad (3.38)$$

findet man für die gesuchte Green'sche Funktion den folgenden Ausdruck

$$(3.39) \quad \begin{aligned} \langle\langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) &= \frac{\hbar}{2\pi} \frac{\hbar\omega}{\hat{D}_{\vec{k}}(\omega)} \left[\hbar\omega \langle[\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle + 2\hat{E}_{\vec{k}} \langle[\tilde{A}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle - 2s\hat{I}_{\vec{k}} \langle[\tilde{C}_{\vec{k}}, \tilde{P}']\rangle \right] + \\ &+ \frac{\lambda}{N} \frac{\hbar\omega}{\hat{D}_{\vec{k}}(\omega)} \left\{ \hbar\omega \sum_{\vec{p}} \left[F(\vec{k}, \vec{p}) \langle\langle \tilde{A}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) + K(\vec{k}, \vec{p}) \langle\langle \tilde{C}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \right] + \right. \\ &+ \left. \left(2\hat{E}_{\vec{k}} [\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \rangle] - 2s\hat{I}_{\vec{k}} [\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle] \right) \sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p}) \langle\langle \tilde{B}_{\vec{p}}; \tilde{P}' \rangle\rangle(\omega) \right\}. \end{aligned}$$

In die Kommutatormittelwerte ist $\tilde{P}'$ aus (3.25) einzusetzen.

Dabei erhält man Mittelwerte von vierfachen Operatorprodukten. Zu ihrer näherungsweisen Berechnung wird $\tilde{F}(1234)$ wie die Green-funktionen linearisiert. Dabei geht $-(\lambda/4sN) \sum_{j \neq 1}^{1,2,3,4} 2sB_j \phi_j(1) \tilde{F}(1234)$ über in

$$- \frac{\lambda}{2sN} \sum_{\vec{p}} [\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle + \frac{\eta}{2} \sigma(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle)] \sum_{j \neq 1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \tilde{A}_{\vec{k}}.$$

Man kann dies mit dem ersten Glied in $\tilde{F}$ aus (3.19) zusammenfassen und erhält:

$$\tilde{F}(t) = \langle \alpha \rangle \sum_{j \neq 1} 2sB_j \phi_j(\vec{k}) \tilde{A}_{\vec{k}}(t) + \eta \sum_{\vec{k}} sB_1 \phi_1(\vec{k}) \tilde{C}_{\vec{k}}(t) \quad (3.40)$$

mit $\langle \alpha \rangle$ aus (3.35). Der Operator $\tilde{F}$ ist somit bis auf den temperaturabhängigen Faktor $\langle \alpha \rangle$ wie im wechselwirkungsfreien Fall gegeben, so daß von allen Kommutatormittelwerten wie dort nur diejenigen mit $\tilde{B}_{\vec{k}}$ nicht verschwinden.

Auf der rechten Seite des Gleichungssystems (3.37) gehen die Green'schen Funktionen $\langle \tilde{A}_{\vec{p}}; \tilde{F}' \rangle$ und $\langle \tilde{C}_{\vec{p}}; \tilde{F}' \rangle$ in Termen proportional zu λ ein. Deshalb genügt es, diese Funktionen bis zu Gliedern der Ordnung λ^0 zu bestimmen. Das kann direkt aus (3.37) erfolgen. Für die Green'sche Funktion $\langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega)$ erhält man dann bis zur Ordnung λ^1 :

$$\begin{aligned} \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) &= \frac{\hbar}{2\pi} \frac{\hbar\omega}{\hat{D}_{\vec{k}}(\omega)} \hbar\omega \langle [\tilde{B}_{\vec{k}}, \tilde{F}'] \rangle + \frac{\lambda}{N} \frac{\hbar\omega}{\hat{D}_{\vec{k}}(\omega)} \sum_{\vec{p}} \left[F(\vec{k}, \vec{p}) 2\hat{E}_{\vec{p}} + K(\vec{k}, \vec{p}) 2s\hat{I}_{\vec{p}} \right] \times \\ (3.41) \quad &\times \langle \tilde{B}_{\vec{p}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) + \\ &+ \frac{\lambda}{N} \frac{\hbar\omega}{\hat{D}_{\vec{k}}(\omega)} 2\hat{W}_{\vec{k}} \coth\left(\beta \frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}\right) \sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p}) \langle \tilde{B}_{\vec{p}}; \tilde{F}' \rangle(\omega). \end{aligned}$$

Hier wurde (2.36) zur Zusammenfassung des letzten Gliedes verwendet.

In die Bestimmungsgleichung für $G_{\vec{p}\vec{p}}^{\sim}(\omega)$, die aus (3.36) durch Fouriertransformation hervorgeht, geht $\langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega)$ mit verschiedenen Vorfaktoren in Summen über die BZ ein. Diese Summen lassen sich wegen der Geometriefaktoren $\phi_j(\vec{k})$ für $j \neq 1$ vereinfachen. Man erhält dabei im wesentlichen folgende zwei verschiedene Gleichungen:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) F(\vec{k}, \vec{p}) f(\vec{k}) = \frac{I_0}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) f(\vec{k}) [\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}} \rangle] \phi_j(\vec{p}) \quad (3.42)$$

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) K(\vec{k}, \vec{p}) f(\vec{k}) = 0$$

Diese Ausdrücke ergeben sich sofort aus den Definitionen von $F(\vec{k}, \vec{p})$ und $K(\vec{k}, \vec{p})$, wenn man die Eigenschaften der Geometriefaktoren berücksichtigt.

Aus (3.41) erhält man mit (3.42) und (3.32) eine Gleichung für $\sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega)$, in die auch $\sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) 2\hat{E}_{\vec{k}} \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega)$ eingeht. Für diese Summe kann man mit (3.41) ebenfalls eine Gleichung aufstellen, in die wieder der erste Ausdruck eingeht, so daß man folgendes Gleichungssystem erhält:

$$\begin{pmatrix} 1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{20}(\omega) & -\lambda I_0 \hat{L}_j^{01}(\omega) \\ -\lambda I_0 4\hat{L}_j^{21}(\omega) & 1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{02}(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) \\ \sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) 2\hat{E}_{\vec{k}} \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) \end{pmatrix} =$$

$$= (2s_{B_j})^2 \hbar \omega \frac{\pi}{\pi} \langle \alpha \rangle N \begin{pmatrix} \hat{L}_j^{01}(\omega) \\ 2\hat{L}_j^{02}(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.43)$$

Hier wurde zur Abkürzung definiert:

$$\hat{L}_j^{\gamma\delta}(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \phi_j^2(\vec{p}) \frac{\hat{W}_{\vec{p}}^{\gamma} \hat{E}_{\vec{p}}^{\delta} \hbar \omega}{\hat{W}_{\vec{p}} \hat{D}_{\vec{p}}(\omega)} \coth\left(\beta \frac{\hat{W}_{\vec{p}}}{2}\right) \quad (3.44)$$

Mit der Determinante der Koeffizientenmatrix

$$\Delta_j(\omega) = [1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{20}(\omega)][1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{02}(\omega)] - (\lambda I_0)^2 4\hat{L}_j^{01}(\omega) \hat{L}_j^{21}(\omega) \quad (3.45)$$

erhält man als Lösung des Gleichungssystems:

$$\sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) = \hbar \omega \frac{\pi}{\pi} (2s_{B_j})^2 \langle \alpha \rangle N \frac{\hat{L}_j^{01}(\omega)}{\Delta_j(\omega)} \quad (3.46)$$

$$\sum_{\vec{k}} 2s_{B_j} \phi_j(\vec{k}) 2\hat{E}_{\vec{k}} \langle \tilde{B}_{\vec{k}}; \tilde{F}' \rangle(\omega) =$$

$$= \hbar \omega \frac{\pi}{\pi} (2s_{B_j})^2 \langle \alpha \rangle N \frac{1}{\Delta_j(\omega)} \left\{ 2 [1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{20}(\omega)] \hat{L}_j^{02}(\omega) + \lambda I_0 4\hat{L}_j^{21}(\omega) \hat{L}_j^{01}(\omega) \right\}.$$

Für die Green'sche Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}}^{\sim}(\omega)$ erhält man somit im Fall $j \neq 1$ und mit

$$\hat{L}_j = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) \frac{\hat{E}_{\vec{k}}}{\hat{W}_{\vec{k}}} \coth\left(\beta \frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}\right) \quad (3.47)$$

aus der fouriertransformierten Gleichung (3.36) folgenden Ausdruck:

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}}^{\sim}(\omega) = \frac{\hbar}{N\epsilon} \langle \alpha \rangle^2 \sum_{j \neq 1} (2sB_j)^2 \frac{1}{\Lambda_j(\omega)} \times \\ \times \left\{ 2 \left[1 - \lambda I_0 2\hat{L}_j^{20}(\omega) \right] \hat{L}_j^{02}(\omega) + \lambda I_0 4\hat{L}_j^{21}(\omega) \hat{L}_j^{01}(\omega) + \lambda I_0 \hat{L}_j \hat{L}_j^{01}(\omega) \right\} . \quad (3.48)$$

Dabei wurde in (3.36) das Produkt von $(1 - \langle \alpha \rangle)$ mit der zweiten Zeile hinzugenommen. Dieses Glied ist proportional zu λ^2 und trat deshalb nicht in (3.36) auf. Nach den Gleichungen (1.25) und (3.8) ist der Ramanstreuquerschnitt im wesentlichen proportional zum Imaginärteil von $G_{\tilde{P}\tilde{P}}^{\sim}(\omega)$, weshalb diese Greenfunktion im folgenden diskutiert werden soll.

Unter der Voraussetzung, daß die Wechselwirkung zwischen Ionen auf einem Untergitter wesentlich kleiner als die antiferromagnetische Wechselwirkung ist und bei kleinem Anisotropiefeld kann (3.48) vereinfacht werden.

In Zähler und Nenner von (3.48) tritt folgender Term auf:

$$4 \left[\hat{L}_j^{02}(\omega) \hat{L}_j^{20}(\omega) - \hat{L}_j^{21}(\omega) \hat{L}_j^{01}(\omega) \right] .$$

Man kann zeigen, daß er unter den erwähnten Voraussetzungen klein gegenüber den anderen Gliedern ist: Wenn man aus $\hat{L}_j^{20}$ und $\hat{L}_j^{21}$ gleiche Faktoren ausklammert, ist dieser Term proportional zu

$$\sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) \frac{\hat{W}(\vec{k}) \hbar \omega}{D_{\vec{k}}(\omega)} \coth\left(\beta \frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}\right) \left[\hat{L}_j^{02} - \hat{E}_{\vec{k}} \hat{L}_j^{01} \right] .$$

Nach Voraussetzung ist $\hat{E}_{\vec{k}}$ eine sich über die gesamte BZ nur schwach ändernde Funktion, siehe Gleichung (2.9). Bei MnF_2 z.B. liegt $\hat{E}_{\vec{k}}$ für $T=0$ zwischen 48 cm^{-1} in der Mitte und 53 cm^{-1} auf dem Rand der BZ. Man kann deshalb näherungsweise $\hat{E}_{\vec{k}}$ als konstant annehmen und $\hat{E}_{\vec{k}} \hat{L}_j^{01}$ durch $\hat{L}_j^{02}$ ersetzen, womit die obige

Feststellung bestätigt ist. Dieses Glied wird folglich vernachlässigt. Man erhält damit für (3.48), wobei $\lambda=1$ gesetzt wurde.

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}}^{\sim}(\omega) = N \frac{\hbar}{\pi} \langle \alpha \rangle^2 \sum_{j \neq 1} (2sB_j)^2 \frac{2\hat{L}_j^{02}(\omega) + I_0 \hat{L}_j \hat{L}_j^{01}(\omega)}{1 - 2I_0 [\hat{L}_j^{02}(\omega) + \hat{L}_j^{20}(\omega)]} \quad (3.49)$$

Von dieser Gleichung wurde bei der numerischen Berechnung des Streuquerschnitts für MnF_2 ausgegangen.

Unter den eingangs gemachten Voraussetzungen kann (3.49) allerdings noch weiter vereinfacht werden: Der Zähler wird näherungsweise gleich $\hat{L}_j^{02}(\omega) [2 + I_0 \hat{L}_j / \hat{E}_{\max}]$ gesetzt, wobei $\hat{E}_{\max}$ den größten Wert von $\hat{E}(\vec{k})$ auf der Oberfläche der BZ bezeichnet. Dies ist eine plausible Näherung, weil für die untersuchten Streugeometrien Gebiete am Rand der BZ stark gewichtet werden. Da sich $\hat{E}(\vec{k})$ nur wenig in der BZ ändert, kann man näherungsweise für $T \approx 0$ $\hat{E}_{\max} \approx -sI_0$ setzen. Die numerische Auswertung ergab für $\hat{L}_j$ Werte von der Größenordnung 10^{-2} . Das ist einsichtig, weil nach (3.47) in $\hat{L}_j$ mit besonderem Gewicht Punkte am Rand der BZ eingehen, wo die Besetzungszahlen klein sind. Man kann deshalb das zweite Glied im Zähler gegen das erste vernachlässigen.

Im Nenner wird $\hat{L}_j^{20}$ umgeformt. Für $\hat{W}(\vec{p})^2$ im Zähler dieses Ausdrucks wird $\hat{E}_{\vec{p}}^2 - (s\hat{I}_{\vec{p}})^2$ gesetzt. Damit geht $\hat{L}_j^{20}$ über in eine Summe von $\hat{L}_j^{02}$ und einem dazu analogen Glied, in dem $\hat{E}_{\vec{p}}^2$ durch $-(s\hat{I}_{\vec{p}})^2$ ersetzt ist. Dieses Glied ist klein, weil $\hat{I}_{\vec{p}}^2$ und $\phi_j^2(\vec{p})$ für $j=2,3,4$ in verschiedenen Bereichen der BZ maximal werden. Somit findet man unter den angegebenen Voraussetzungen:

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}}^{\sim}(\omega) = N \frac{\hbar}{\pi} \langle \alpha \rangle^2 \sum_{j \neq 1} (2sB_j)^2 \frac{2\hat{L}_j^{02}(\omega)}{1 - 4I_0 \hat{L}_j \hat{L}_j^{02}(\omega)} \quad (3.50)$$

Diese Gleichung ist nun mit der Gleichung (3.23) für den wechselwirkungsfreien Fall mit $j \neq 1$ zu vergleichen. Mit (3.43) kann man für Gleichung (3.23) schreiben:

$$G_{\tilde{P}\tilde{P}}^0(\omega) = N \frac{\hbar}{\pi} \sum_{j \neq 1} (2sB_j)^2 2L_j^{02}(\omega) \quad .$$

Die Wechselwirkung der Magnonen führt zum temperaturabhängigen

Intensitätsfaktor $\langle \alpha \rangle^2$ und zum Auftreten des Terms $\hat{L}_j^{02}(\omega)$ mit dem Faktor $2I_0$ im Nenner. Der Intensitätsfaktor $\langle \alpha \rangle^2$ hängt nach (3.35) vom Anisotropiefaktor η ab. Die experimentelle Untersuchung von MnF_2 zeigt, daß in den Spurstreugeometrien keinerlei Zweimagnonen-Ramanstreuung nachzuweisen ist. Formal wird deshalb in der Literatur oft $\eta=0$ gesetzt. Das führt in dieser Näherung auf einen Intensitätsfaktor, der nach (3.35) und (2.39) gleich dem temperaturabhängigen Faktor der Untergittermagnetisierung in Spinwellennäherung ist. Bei Berücksichtigung der longitudinalen Spinkomponenten und im Grenzfall der Isotropie ist der Intensitätsfaktor dagegen nach (2.45) identisch mit dem Renormierungsfaktor des antiferromagnetischen Austauschintegrals, der bei Vernachlässigung der Wechselwirkung innerhalb eines Untergitters und für kleines Anisotropiefeld B_A praktisch gleich dem Renormierungsfaktor der Spinwellenenergie ist. Während die Untergittermagnetisierung bei der Néeltemperatur verschwindet, diese Forderung wird allerdings von der Spinwellennäherung nicht erfüllt, bleibt $\langle \alpha \rangle$ dort größer als Null, so daß diese Theorie eine endliche Intensität bei T_N erlaubt. Der Ramanstreuquerschnitt ist nach (3.8) im wesentlichen proportional zu

$$i \frac{1}{1-e^{-\beta \hbar \omega}} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} [G_{\tilde{P}\tilde{P}}(\omega+i\epsilon) - G_{\tilde{P}\tilde{P}}(\omega-i\epsilon)] .$$

Bei polarisiertem anregendem und analysiertem gestreutem Licht ist in der Summe über j in der Gleichung (3.50) nur ein Glied von Null verschieden. Der Grenzwert kann in dem obigen Ausdruck für beide Glieder getrennt und dort für Zähler und Nenner einzeln ausgeführt werden. Man erhält damit für den Streuquerschnitt bei Berücksichtigung der Wechselwirkung der Magnonen einen Ausdruck, der proportional ist zu

$$\frac{1}{1-e^{-\beta \hbar \omega}} \frac{\pi}{\pi} N(2sB_j)^2 \langle \alpha \rangle^2 \frac{4 \operatorname{Im}(\hat{L}_j^{02}(\omega))}{[1-4I_0 \operatorname{Re}(\hat{L}_j^{02}(\omega))]^2 + [4I_0 \operatorname{Im}(\hat{L}_j^{02}(\omega))]^2} \quad (3.51)$$

mit

$$\begin{aligned} \text{Im}(\hat{L}_j^{02}(\omega)) &= \tau \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) \frac{\hat{E}_{\vec{k}}^2}{4\hat{W}_{\vec{k}}^2} \coth(\beta \frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}) [\delta(\hbar\omega - 2\hat{W}_{\vec{k}}) - \delta(\hbar\omega + 2\hat{W}_{\vec{k}})] \\ \text{Re}(\hat{L}_j^{02}(\omega)) &= \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \phi_j^2(\vec{k}) \frac{\hat{E}_{\vec{k}}^2}{4\hat{W}_{\vec{k}}^2} \coth(\beta \frac{\hat{W}(\vec{k})}{2}) P \left[\frac{1}{\hbar\omega - 2\hat{W}_{\vec{k}}} - \frac{1}{\hbar\omega + 2\hat{W}_{\vec{k}}} \right] \end{aligned}$$

wobei P wieder den Hauptwert bezeichnet.

Bei Verwendung der Gleichung (3.49) erhält man einen ähnlichen Ausdruck wie in (3.51), der jedoch wesentlich umfangreicher ist. Im Nenner ist $\hat{L}_j^{02}$ durch $(\hat{L}_j^{02} + \hat{L}_j^{20})/2$ ersetzt und im Zähler treten Glieder proportional zu $\hat{L}_j$ und Mischglieder von $\hat{L}_j^{20}$ und $\hat{L}_j^{02}$ auf. Diese Glieder führen zu einer geringen Modifikation des Bandenprofils.

3.2.3. Vergleich der Ausdrücke (3.48), (3.49) und (3.50) mit publizierten Ergebnissen

In ihrer Arbeit über den Einfluß der Spinwellenwechselwirkung auf die Zweimagnonenspektren gehen Elliott und Thorpe /29/ von einem Hamiltonoperator aus, in dem sie anisotrope Austauschwechselwirkung zwischen Ionen desselben Untergitters und auch zwischen Ionen verschiedener Untergitter, Punktanisotropie und ein effektives Anisotropiefeld zulassen. Sie gehen direkt von den Spinoperatoren aus und berechnen den Streuquerschnitt mit Hilfe von Greenfunktionen, die sie aus Bewegungsgleichungen bestimmen. Sie behandeln nur den Fall $T=0$ und wenden das formale Ergebnis ihrer Rechnung auf das kubische RbMnF_3 an. Da die Symmetrie des Gitters im wesentlichen in die Faktoren $\phi_j^2(\vec{p})$ eingeht, kann ihr Ergebnis mit den obigen Ausdrücken verglichen werden. Unter der Annahme $\hat{E}_{\vec{p}}/\hat{W}_{\vec{p}} = 1$ und im Grenzfall großer Spinquantenzahlen, genauer für $2sz \gg 1$, wobei z die Anzahl der antiferromagnetischen Nachbarn eines Ions bezeichnet, und für $T=0$ geht die Gleichung (3.50) in den Ausdruck von Elliott und Thorpe über. Die Annahme $\hat{E}_{\vec{p}}/\hat{W}_{\vec{p}} = 1$ ist für die Streugeometrien (xy), (xz), (yz) und ähnliche eine gute Näherung, da hier der Geometriefaktor $\phi_j^2(\vec{p})$ Gebiete des Randes der BZ stark gewichtet, wo exakt $\hat{E}_{\vec{p}} = \hat{W}_{\vec{p}}$ gilt.

Thorpe /30/ wendet das formale Ergebnis aus /29/ bei $T=0$ auf

MnF_2 an. Mit den bereits erwähnten Näherungen und mit $\hat{E}_p = -s\hat{I}_0$ in L_j^{202} decken sich Thorpe's Ergebnis und (3.50). Es wird allerdings erwartet, daß die Berücksichtigung der ferromagnetischen Wechselwirkung, zumal L_1 nicht klein gegen $|J_2|$ ist, auch für $T=0$ einigen Einfluß auf das Bandenprofil haben wird.

Solyom /31/ untersucht den Fall eines Antiferromagneten mit anisotroper Austauschwechselwirkung und ohne effektivem Anisotropiefeld für Temperaturen verschieden von Null. Er geht direkt von den Spinoperatoren aus und behandelt die Wechselwirkung der Spinwellen nach einer störungstheoretischen Methode, die von Vaks et al. /32/ für Ferromagnete vorgeschlagen und von Pikalev et al. /33/ auf Antiferromagnete ausgeweitet wurde. Solyom berechnet keine Spektren, sondern diskutiert sein Ergebnis nur qualitativ. Da der Ausdruck für die Green'sche Funktion $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}(\omega)$ kompliziert ist, kann nicht entschieden werden, inwieweit die Ergebnisse aus /31/ und 3.3.2. gleichen physikalischen Inhalts sind.

Chinn, Davies et al. /38/ berechnen den Ramanstreuquerschnitt für einen anisotropen Ferrimagneten mit Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn auf verschiedenen Untergittern für $T=0$. Sie verwenden die Methode von Elliott und Thorpe /29/ und erhalten für $G_{\tilde{P}\tilde{P}'}(\omega)$ einen Ausdruck, der im Grenzfall des Antiferromagneten und unter den zu Beginn dieses Abschnittes erwähnten Näherungen mit (3.50) übereinstimmt. Sie wenden die Theorie auf das kubische KNiF_3 , auf das zweidimensionale K_2NiF_4 und auf das ferrimagnetische RbNiF_3 an.

In /34/ erweitern Davies, Chinn et al. die Theorie auf Temperaturen verschieden von Null. Sie behandeln den Fall eines isotropen Hamiltonoperators mit Wechselwirkung nur zwischen nächsten Nachbarn auf verschiedenen Untergittern. Sie gehen von den Spinoperatoren mittels der Dyson-Maleev-Transformation, siehe z.B. /36/, zu Spinwellenoperatoren über, entwickeln wie in 3.3.2. bis zu Gliedern vierfacher Produkte dieser Operatoren und behandeln den Störoperator mit der Methode der Feynman-Diagramme. Ihr Ergebnis ist äquivalent mit (3.48), wenn man dort $\langle \alpha \rangle = 1$ setzt. In /37/ diskutiert Davies das Auftreten dieses Faktors. Das Ergebnis der Theorie wird in /34/ auf den Perovskit KNiF_3 und in /35/ auf das zweidimensionale System K_2NiF_4 angewandt.

Cottam /39/ verwendet für einen Hamiltonoperator mit anisotroper Austauschwechselwirkung und effektivem Anisotropiefeld wie Solyom die störungstheoretische Methode, die auf Vaks et al. zurückgeht. Das Ergebnis unterscheidet sich von dem Ausdruck (3.50) durch die Vernachlässigung von $L(\vec{p})$ in einem der Faktoren $\hat{E}(\vec{p})$ in $\hat{L}_j^{02}$ und durch die Renormierung. Die Methode von Cottam führt dazu, daß die Spinquantenzahl s in $\hat{E}(\vec{k})$ und $\hat{W}(\vec{k})$ wie die in der Molekularfeldnäherung berechnete Untergittermagnetisierung renormiert ist. Außerdem tritt ein Korrekturglied auf, das für große s unerheblich ist. Für $T=0K$ wird der Ausdruck dem entsprechenden von Elliott und Thorpe sehr ähnlich. Cottam berechnet in dieser Arbeit Ramanspektren für $RbMnF_3$ und NiO für verschiedene Temperaturen. In /40/ wendet Cottam die Theorie auf die Rutilstruktur an und berechnet für MnF_2 die zwei wesentlich verschiedenen Spektren bei 10K und für FeF_2 das Spektrum bei 15K.

Natoli und Ranninger /41/ lassen wie Cottam anisotrope Austauschwechselwirkung und ein effektives Anisotropiefeld zu. Sie beschränken die Wechselwirkung auf nächste Nachbarn auf verschiedenen Untergittern. Sie gehen direkt von den Spinoperatoren aus und bestimmen die Green'schen Funktionen aus ihren Bewegungsgleichungen. Da sie keine Kopplung zwischen Ionen eines Untergitters berücksichtigen, ist die Größe $\hat{E}(\vec{p})$ bei ihnen unabhängig von $\vec{p}$. Unter der Annahme $\hat{L}_j^{02} \approx \hat{L}_j^{20}$, die bereits in 3.3.2. bei der Diskussion der Gleichung (3.48) verwendet wurde, stimmt das Ergebnis in /41/ mit (3.50) bis auf Glieder höherer Ordnung überein. Sie berechnen Spektren von CoF_2 , NiF_2 und FeF_2 , die alle Rutilstruktur haben, bei verschiedenen Temperaturen.

II. Ramanspektroskopische Untersuchung von MnF_2 und MgF_2

1.1. Experimentelle Anordnung

Die Messungen wurden an einer vorhandenen Apparatur durchgeführt, die aus den zwei Komponenten Ramanapparatur und Badkryostat bestand. Eine Beschreibung der Ramanapparatur findet man in /42/, die des Kryostaten in /43/.

Als Lichtquelle diente ein Argon-Ionen-Laser der Firma Spectra Physics, Modell 165, der bei den verwendeten Wellenlängen von 476,5 nm und 514,5 nm eine Leistung von etwa 600 mW bzw. 1,5 W abgab. Der verwendete Monochromator war ein Czerny-Turner-Doppelmonochromator von Jarrell-Ash, Modell 25-102, mit geraden Spalten und Gittern mit 1180 Strichen/mm und einer Blaze-Wellenlänge von 500 nm. Das Signal wurde mit einem auf 240K gekühlten Photomultiplier (Typ EMI 9558A) mit S20 Charakteristik und einem Photonen-zähler von Topp /44/ registriert und auf einen Schreiber gegeben. Die spektrale Spaltbreite betrug im allgemeinen 5 cm^{-1} . Nur bei der Untersuchung der äußerst intensiven Fluoreszenz von MnF_2 bei tiefen Temperaturen wurde die Spaltbreite auf ca. 2 cm^{-1} verringert. Die Registrierbedingungen wurden den Erfordernissen der verschiedenen Untersuchungen entsprechend verschieden gewählt, jedoch wurde die Zeitkonstante stets kleiner gewählt, als es die Erfüllung der Schubertbedingung verlangt, siehe auch die Arbeit von Topp /45/. Die Abb. 4 zeigt die experimentelle Anordnung schematisch.

Der Badkryostat der Firma Oxford Instruments gestattete die Untersuchung der Probe im gesamten Temperaturbereich von etwa 5K bis Raumtemperatur. Die Probe steht dabei über ein Austauschgas nur in indirektem Kontakt mit dem Kühlmittel. In den Abb. 5 und 6 sind der schematische Aufbau des Kryostaten und des Einsatzes zur Erreichung variabler Probertemperaturen wiedergegeben. Der Aufbau und die Wirkungsweise des Kryostaten sind in /43/ genau beschrieben.

Als Kaltemittel dienten flüssiges Helium (LHe) und flüssiger Stickstoff (LN_2). Der Temperaturbereich, der mit LN_2 untersucht werden kann, kann bis etwa 64K ausgedehnt werden, wenn der Druck

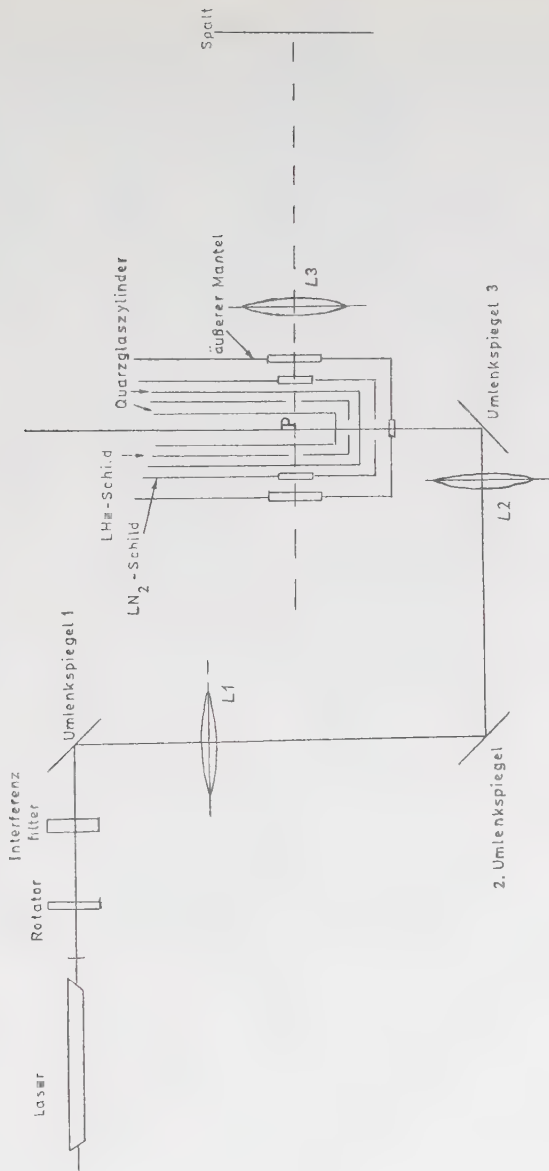


Abb. 4. Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung
P: Probe, L1, L2: Fokussierungslinsen, L3: Abbildungs-
linse.

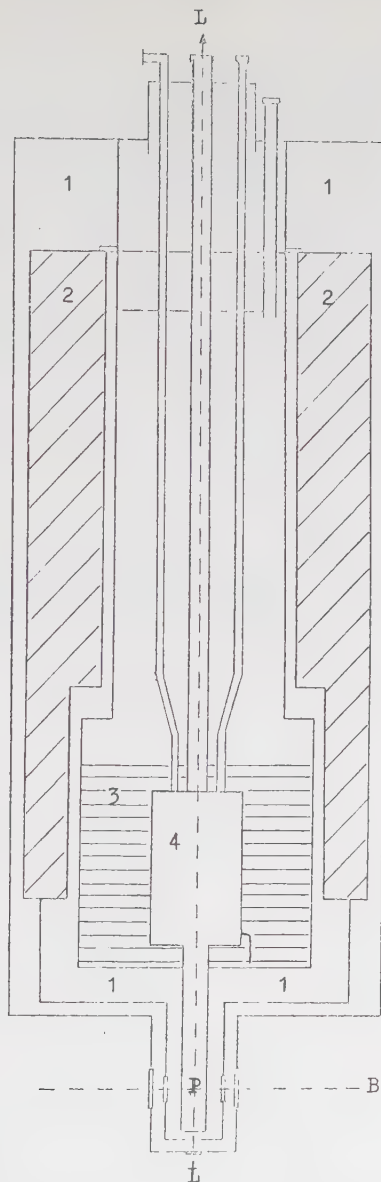
über dem abdampfenden Stickstoff auf etwa 100 Torr erniedrigt wird. Auf diese Weise war es möglich, den Überlappungsbereich zwischen den mit LHe und LN_2 zu erreichenden Temperaturen zu tieferen Temperaturen zu verschieben und so große Verdampfungsraten des Heliums bei hohen Proben Temperaturen zu vermeiden. Die niedrigsten erreichbaren Temperaturen hängen wesentlich von der Absorption der Probe ab. Sie lagen bei MnF_2 bei Verwendung der 476,5 nm-Linie und bei MgF_2 allgemein etwa 1 bis 2 K über der jeweiligen Siedetemperatur des Kältemittels. Bei Verwendung der 514,5 nm-Linie bei MnF_2 lag die niedrigste gemessene Temperatur aufgrund der verstärkten Absorption bei ca. 8 K.

Die in dieser Arbeit angegebenen Temperaturen der Probe sind bis ca. 100 K an der Oberfläche der Probe und bei höheren Temperaturen an der Heizwicklung gemessen, obwohl die Temperatur des Streuzentrums sicher höher liegt. Es bestand keine Möglichkeit diese Temperatur experimentell zu bestimmen. Theoretisch könnte man die Stokes'sche und antistokes'sche Intensität der Phononen vergleichen. Da die antistokes'schen Linien aber bei tiefen Temperaturen sehr intensitätsschwach werden, ist die Bestimmung der Intensität mit großen Fehlern verbunden, und die damit errechnete Temperatur wird äußerst ungenau. In Kristallen mit kristallographischen Phasenübergängen, die sich im Phononenspektrum auswirken, kann die Kristalltemperatur relativ zur Übergangstemperatur festgelegt werden, siehe /46/. Diese Möglichkeit bestand aber bei den untersuchten Kristallen nicht. Der Übergang zwischen para- und antiferromagnetischem Zustand äußert sich nicht in einer plötzlichen Änderung des Ramanspektrums. Aus diesem Grund muß man sich mit der Angabe der an der Oberfläche gemessenen Temperatur begnügen.

Der Fehler der angegebenen Temperatur ist in den verschiedenen Temperaturbereichen unterschiedlich. Bei Temperaturen unter 100 K hängt das mit der Charakteristik des Meßfühlers zusammen. Die Temperaturen können unterhalb von 40 K auf etwa 0,5 K, bis 60 K auf etwa 1 K und bis 100 K auf ca. 2 K genau angenommen werden. Bei Temperaturen oberhalb von 100 K beträgt der Fehler etwa 3%.

Zur Temperaturmessung wird auf /43/ verwiesen.

Es soll hier auf einige Mängel des Kryostaten hingewiesen werden, die teils konstruktiv bedingt, teils prinzipieller Natur sind



- P Probe
- L Richtung des Laserstrahls
- B Beobachtungsrichtung
- 1 Vakuummantel
- 2 LN_2 -gekühlter Strahlungsschild
- 3 Behälter für LHe
- 4 Einsatz für variable Proben-temperaturen

Abb. 5. Schematischer Aufbau des Kryostaten (nach /43/).

oder mit den Möglichkeiten des Labors zusammenhängen, und die ihre Auswirkung auf die Messungen hatten.

Es waren keine He-Rückgewinnungsanlage im Labor und keine Rückführungsleitung zu einer räumlich entfernten Anlage vorhanden, so daß das Helium frei abdampfen mußte und damit verloren war. Da die Abdampfrate mit der Proben temperatur zunimmt, wurde aus diesem Grund darauf verzichtet, mit der Proben temperatur höher als bis etwa 70K zu gehen, obwohl es sinnvoll gewesen wäre, den Bereich bis etwa 100K auszudehnen und so eine Überlappung der mit LHe und LN₂ erreichbaren Temperaturbereiche zu erhalten. Die Verbindung der beiden Temperaturbereiche wurde über die gemessenen Intensitäten der A_{1g}- und E_g-Phononen hergestellt. Allerdings ist dabei mit einem großen Fehler, etwa 20%, zu rechnen.

Zu den konstruktiven Mängeln gehört einmal die Tatsache, daß der Laserstrahl den Kryostaten von unten nach oben und auf seiner ganzen Länge durchstrahlt. Ausfrierende Verunreinigungen des Austauschgases fallen dabei auf zu durchstrahlende Fenster. Außerdem muß die Längsachse des Kryostaten recht genau vertikal einjustiert werden, damit der Laserstrahl den Kryostaten wieder verlassen kann. Als weiterer Punkt wird die schlechte Justierbarkeit angeführt. Die Probe wird in einem Probenrohr von oben in den Kryostaten eingeführt und ist dann nur noch um die vertikale Achse des Kryostaten unabhängig von diesem drehbar. Alle Justierungen müssen durch Bewegung des gesamten Kryostaten oder durch Kippen des Laserstrahls vorgenommen werden. Die erste Möglichkeit ist durch Unhandlichkeit und Ungenauigkeit gekennzeichnet. Das letztere hat zur Folge, daß der Laserstrahl nicht mehr parallel zum Spalt verläuft. Damit steht der $\vec{E}$ -Vektor nicht mehr parallel oder senkrecht zum Spalt. Mit einer geringen Fehlorientierung muß deshalb gerechnet werden.

Von prinzipieller Natur waren die Dichtefluktuationen des Austauschgases bei tiefen Temperaturen. Wegen der Konstruktion des Kryostaten als Badkryostat, im Hinblick auf nachträglichen Einbau von supraleitenden Magnetspulen, und der Forderung nach variabler Proben temperatur, muß man das Prinzip des Austauschgases verwenden. Das Austauschgas umgibt die Probe, und der Laserstrahl und das Streulicht werden deshalb vom Gas beeinflusst. Bei Temperaturen oberhalb von 30K ergeben sich daraus praktisch keine

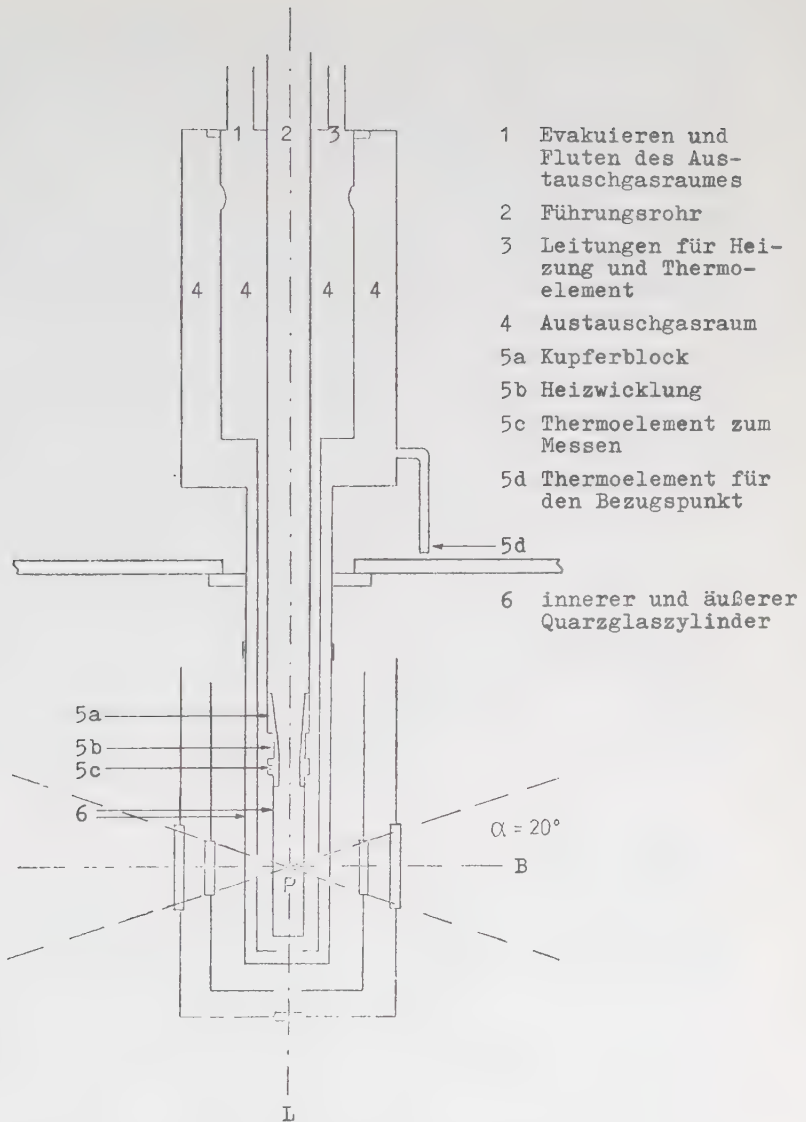


Abb. 6. Einsatz für variable Probertemperaturen

Schwierigkeiten. Will man jedoch tiefere Temperaturen erreichen, muß der Druck von etwa 10^{-3} auf größenordnungsmäßig 500 Torr erhöht werden. Dabei machen sich Änderungen des Brechungsindex des Gases aufgrund von Temperaturgradienten und starken Dichtefluktuationen störend bemerkbar, vor allem bei der Bestimmung von Intensitäten.

Bei tiefen Temperaturen und hohen Drucken des Austauschgases tritt wegen des Temperaturgradienten längs des Probenrohrs ein Dichtegefälle auf, das zwei Größenordnungen umfaßt. Das Gas wirkt dabei als Zerstreuungslinse und weitet den Laserstrahl soweit auf, daß er das Probenrohr nicht mehr verlassen kann. Solange diese Aufweitung nach der Probe geschieht, ist mit keiner Wirkung auf die Spektren zu rechnen. Tatsächlich trat jedoch auch in der Probe eine deutliche Aufweitung des Laserstrahls auf. Außerdem wurden starke seitliche Hin- und Herbewegungen des Laserstrahls beobachtet, die bei Druckerniedrigung sofort verschwanden und deshalb offensichtlich mit Dichtefluktuationen zusammenhängen. Die Ursache dafür sind wohl Temperaturgradienten quer zum Probenrohr durch lokale Aufheizung der Probe oder der Halterung. Beide erwähnten Erscheinungen führten dazu, daß nur ein Teil des Streuvolumens auf den Spalt des Spektrographen abgebildet wurde. Bei Druckerniedrigung verschwanden beide Effekte, was unmittelbar zu einer Zunahme der Intensität des Ramanspektrums führte.

1.2. Kristalle

Es wurden folgende Kristalle untersucht: Eine Probe von MgF_2 , die von semi-elements bezogen wurde, und zwei Proben von MnF_2 , die eine ebenfalls von semi-elements, während uns die andere freundlicher Weise von Gebhardt, Regensburg, zur Verfügung gestellt wurde.

Die Kristalle mußten für den Einsatz im Kryostaten geschnitten und dann poliert werden. Die Orientierung wurde durch die Registrierung der Phononenspektren überprüft.

Die Kristalle von semi-elements waren von sehr guter optischer Qualität und enthielten nur einen geringen Prozentsatz an Verunreinigungen, wie aus den Fluoreszenzmessungen an MnF_2 hervorging. Aus den analogen Messungen an der Probe aus Regensburg folgte, daß die Dotierung hier etwas höher war, was jedoch keinen meßbaren Einfluß auf die Ramanmessungen hatte.

2. Ramanstreuung an Phononen des MnF_2 und MgF_2

Das Phononenspektrum von MnF_2 wurde aus zwei Gründen untersucht. Einmal sind über das Temperaturverhalten keine experimentellen Ergebnisse veröffentlicht, und zum anderen, und dies war der Hauptgrund, war bei der Untersuchung der Intensität der Zweimagnonenstreuung ein Standard nötig, um Änderungen in den experimentellen Bedingungen zu eliminieren. Dafür bietet sich natürlich das Phononenspektrum an, sofern es keine Anomalien zeigt. Um diese Frage zu klären, wurden die zu diskutierenden Messungen durchgeführt. Aus Vergleichsgründen wurde außerdem das Phononenspektrum von MgF_2 untersucht, das dieselbe Kristallstruktur wie MnF_2 hat und keinerlei magnetische Phasenumwandlung erfährt.

Bei der Ramanstreuung müssen die beiden Erhaltungssätze für die Energie und für den Impuls oder Quasiimpuls erfüllt sein.

Für Stokes'sche Streuung gilt:

$$\hbar\omega_i = \hbar\omega_s + \hbar\omega \quad \hbar\vec{k}_i = \hbar\vec{k}_s + \hbar\vec{k}$$

Die Indizes i und s bezeichnen die Größen des einfallenden (incident) und gestreuten (scattered) Photons, die Größen ohne Index beziehen sich auf das Quasiteilchen.

Bei antistokes'scher Streuung ist das gestreute Licht zu höheren Energien verschoben. Es wird ein Quasiteilchen im Streuprozess vernichtet. Folglich sind in den obigen Gleichungen für diesen Fall die + -Zeichen durch - zu ersetzen. Die wohlbekannte Abschätzung für 90° -Streuung und sichtbares Licht zeigt, daß der Wellenvektor des bei der Streuung erzeugten oder vernichteten Quasiteilchens um zwei bis drei Größenordnungen kleiner als die maximalen $\vec{k}$ -Vektoren in der BZ ist. Der Wellenvektorerhaltungssatz reduziert sich also bei Ramanstreuung erster Ordnung auf die Forderung $\vec{k} \approx 0$. Diese Bedingung ist stets im Maßstab der BZ, nicht absolut, zu verstehen, denn tatsächlich liegen die Wellenvektoren in der Größenordnung von 10^5 cm^{-1} .

Bei der Ramanstreuung zweiter Ordnung werden zwei Quasiteilchen erzeugt oder vernichtet, so daß sich der Impulssatz in diesem Fall auf $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 \approx 0$ reduziert. Die beiden Quasiteilchen haben somit praktisch entgegengesetzt gleiche Wellenvektoren, sind jedoch sonst keiner Beschränkung unterworfen, so daß man

also Quasiteilchen aus der gesamten BZ, allerdings nicht isoliert, beobachten kann, falls die Gruppentheorie dies erlaubt.

2.1. Kristallstruktur und einige Eigenschaften von MnF_2

MnF_2 und MgF_2 sind isomorphe Verbindungen. Sie kristallisieren in der Rutilstruktur. Dies ist ein tetragonal primitives Gitter der Raumgruppe D_{4h}^{14} , ($P4_2/mnm$). Die Elementarzelle enthält zwei Moleküle der Verbindungen. Sie ist in Abb. 1 für MnF_2 nach /47/ dargestellt.

Unterhalb der Néeltemperatur $T_N = 67\text{K}$ geht MnF_2 vom paramagnetischen Zustand in den antiferromagnetischen über. Die magnetischen Momente der Mn^{++} -Ionen sind antiparallel zueinander und parallel zur c-Achse des Kristalls gerichtet. Nach Messungen von Gibbons /48/ verkürzt sich bei der Abkühlung des Kristalls der Gitterabstand in c-Richtung, während in der isotropen Ebene praktisch keine Änderung eintritt.

Zusätzlich zu dieser durch anharmonische Terme im Gitterpotential bedingten Verkürzung tritt bei Abkühlung unter die Néeltemperatur eine weitere Verkürzung ein, die offensichtlich mit der magnetischen Ordnung zusammenhängt. Die Abb. 7 zeigt diese in /48/ gemessene Verkürzung mit Messungen von Borovik-Romanov et al. /49/ zum Brechungsindex. Der auf OK extrapolierte Wert der Verkürzung $\Delta c/c$ beträgt zwischen 273K und OK etwa 0,3%. Etwa 1/3 dieser Verkürzung findet im Bereich unterhalb von T_N statt. Untersuchungen von Strong /50/ ergaben, daß mit der antiferromagnetischen Ordnung kein Sprung in der Volumenänderung verbunden ist. Entsprechende Messungen an MgF_2 sind nicht bekannt. Es wird jedoch angenommen, daß es hinsichtlich der auf die Anharmonizitäten zurückzuführenden Volumenänderungen ein ähnliches Verhalten wie MnF_2 zeigt.

MnF_2 ist ein positiv doppelbrechender Kristall mit einer Differenz zwischen außerordentlichem und ordentlichem Brechungsindex von $n_e - n_o = 0,026$, siehe Borovik-Romanov et al. /49/. Diese Differenz ändert sich nach diesen Messungen bei der Abkühlung des Kristalls. Sie nimmt zunächst leicht zu, um sich im Bereich von T_N stark zu ändern und bis OK auf einen um etwa 5% kleineren Wert,

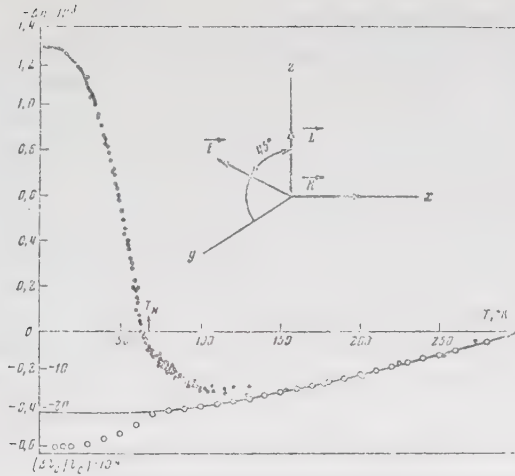


Abb. 7. Temperaturabhängigkeit der Differenz zwischen außerordentlichem und ordentlichem Brechungsindex nach /49/ und Temperaturabhängigkeit des Gittervektors in z-Richtung nach /48/.

als bei 300K, abzunehmen, siehe Abb. 7. Die Abnahme unterhalb von T_N ist eine Folge der magnetischen Ordnung. Die Messungen bestätigen gut den Zusammenhang $\Delta n \approx \langle M^2 \rangle$, wobei M die Untergittertermagnetisierung und Δn die Abweichung der Differenz $n_e - n_o$ vom Wert 0,026 bei ca. 300K sind.

2.2. Gruppentheoretische Aussagen über das Phononenspektrum

Aussagen über das zu erwartende Phononenspektrum erhält man durch die Faktorgruppenanalyse.

Da die Raumgruppe D_{4h}^{14} nicht-symmorph ist, läßt sie sich nicht in ein direktes Produkt der Translationsgruppe mit einer Gruppe reiner Rotationen zerlegen. Deshalb sind die irreduziblen Darstellungen der Raumgruppe, nach denen sich die Phononen mit beliebigem $\vec{k}$ in der BZ transformieren, nicht so einfach wie für symmorphe Raumgruppen zu finden /51/. Für $\vec{k} = 0$ sind die irreduziblen Darstellungen jedoch gleich denen der Punktgruppe $D_{4h}, (4/mmm)$. Das übliche Verfahren der Faktorgruppenanalyse, die Klassifizierung der Phononen zu bestimmen, geht davon aus festzustellen, wieviel Atome, Moleküle und Molekülverbände bei Anwendung eines Raumgruppenelementes in sich oder in eine äquivalente Lage übergehen. In der Tabelle 1 ist dies für die Struktur in Abb. 1 durchgeführt. Um auch eventuell solche Normalschwingungen erhalten zu können, bei denen nur die Metall- oder F^- -Ionen Bewegungen ausführen, sind die entsprechenden Angaben mit aufgenommen. In den Zeilen 1 bis 3 sind die Anzahlen der Ionen angegeben, die bei der entsprechenden Transformation in sich oder in eine äquivalente Lage übergehen. In den Zeilen 4 bis 7 sind die Charaktere der (reduziblen) Darstellungen der Transformationen angegeben, die alle Ionen, bzw. alle Metall- oder alle F^- -Ionen und einen polaren Vektor invariant lassen. In der 8. Zeile sind die Charaktere der Darstellung der Transformation eines symmetrischen Tensors angegeben.

Tabelle 1. Faktorgruppenanalyse für die Rutilstruktur

		$\{E 0\}$	$\{C_2 0\}$	$2\{C_2 \vec{c}\}$	$2\{C_2 \vec{r}\}$	$2\{C_2 0\}$	$\{I 0\}$	$\{C_4 0\}$	$2\{C_4 \vec{r}\}$	$2\{C_4 \vec{r}\}$	$2\{C_4 0\}$
1	inv. Ionen	6	2	0	0	4	2	6	0	0	4
2	inv. Me-Ionen	2	2	0	0	2	2	2	0	0	2
3	inv. F ⁻ -Ionen	4	0	0	0	2	0	4	0	0	2
4	χ (Ionen)	18	-2	0	0	-4	-6	6	0	0	4
5	χ (Me ⁺⁺)	6	-2	0	0	-2	-6	2	0	0	2
6	χ (F ⁻)	12	0	0	0	-2	0	4	0	0	2
7	χ (pol. Vek.)	3	-1	0	0	-1	-3	1	0	0	1
8	χ (sym. Ten.)	6	2	0	0	2	6	2	0	0	2

Das Achsensystem ist in Abb. 1 angegeben. $\vec{c} = \frac{a}{2}(\vec{e}_x + \vec{e}_y) + \frac{c}{2}\vec{e}_z$.
inv. bedeutet invariant bezüglich des jeweiligen Gruppenelementes.

Mit Hilfe der bekannten Formel aus der Gruppentheorie,

$$n^j = \frac{1}{g} \sum_G \chi(G) \chi^j(G)^*,$$

wobei g die Gruppenordnung, $\chi(G)$ den Charakter des Gruppenelements G in der betrachteten Darstellung und $\chi^j(G)$ den Charakter in der irreduziblen Darstellung j der Gruppe bezeichnen, können die Anzahlen n^j der irreduziblen Darstellungen berechnet werden, die die zu untersuchende Darstellung enthält.

Findet man bei dieser Ausreduktion der Darstellung in Zeile 5 oder 6 irreduzible Anteile, die in nur einer dieser beiden Zeilen vorkommen, dann setzen sich die Normalschwingungen dieser Symmetrie nur aus Bewegungen der einen Ionenart zusammen.

Die Ausreduktion führt zu folgenden Ergebnissen:

1. Zeile 4: Die 18 Normalschwingungen, entsprechend den 18 Freiheitsgraden der sechs Ionen in der EZ, haben für $\vec{k} = 0$ folgende Symmetrien:

$$A_{1g} \quad A_{2g} \quad B_{1g} \quad B_{2g} \quad E_g \quad 2A_{2u} \quad 2B_{1u} \quad 4E_u$$

Die Darstellungen sind nach /52/ bezeichnet.

2. Aus Zeile 7 erhält man die irreduziblen Darstellungen, nach denen sich ein polarer Vektor transformiert:

$$A_{2u} \quad E_u .$$

Der Vektor des elektrischen Dipolmoments ist ein polarer Vektor, so daß dieses Ergebnis die Auswahlregeln für die IR-Spektroskopie liefert.

Da die akustischen Phononen für $\vec{k} = 0$ in Translationen des gesamten Kristalls übergehen, die durch einen polaren Vektor beschrieben werden, gibt dieses Ergebnis gleichzeitig die irreduziblen Darstellungen der akustischen Phononen für $\vec{k} = 0$ an.

3. Zeile 5 und 6: Es gibt 5 Normalschwingungen, an denen nur die F^- -Ionen beteiligt sind:

$$A_{1g} \quad A_{2g} \quad B_{1g} \quad B_{2g} \quad E_g .$$

Die Normalschwingungen der anderen Symmetrien setzen sich aus Bewegungen aller Ionen des Kristalls zusammen.

4. Aus der 8. Zeile erhält man die Auswahlregeln für den Ramaneffekt. Ein symmetrischer Tensor kann in 5 Anteile zerlegt werden, die sich wie die irreduziblen Darstellungen A_{1g} , B_{1g} , B_{2g} und E_g transformieren. In der Tabelle 2 sind diese Tensoren nach Loudon /53/ und Poulet et Mathieu /95/ angegeben.

Tabelle 2. Raman-Tensoren der Punktgruppe D_{4h}

$$\begin{array}{cccc}
 \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & -e \\ 0 & 0 & 0 \\ -e & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e \\ 0 & e & 0 \end{pmatrix} \\
 A_{1g} & B_{1g} & B_{2g} & E_g
 \end{array}$$

In der Tabelle 3 ist das Ergebnis der Faktorgruppenanalyse für MnF_2 zusammengefaßt. Die berechneten Wellenzahlen sind der Arbeit /55/ entnommen, wo auch die beobachteten Wellenzahlen aus verschiedenen Arbeiten angegeben sind.

Tabelle 3. Ergebnis der Faktorgruppenanalyse für MnF_2

Mode	Raman -aktiv	IR	Bewegungs- typ	$\omega [\text{cm}^{-1}]$ beob. zitiert in /55/	$\omega [\text{cm}^{-1}]$ berech. nach /55/
A_{1g}	+	-	F^-	341	341
A_{2g}	-	-	F^-	-	337
B_{1g}	+	-	F^-	61	61
B_{2g}	+	-	F^-	476	476
E_g	+	-	F^-	247	247
A_{2u}	-	+	Mn^{++}, F^-	295 TO	362
				520 LO	520
B_{1u}	-	-	Mn^{++}, F^-	-	288
B_{1u}	-	-	Mn^{++}, F^-	-	99
E_u	-	+	Mn^{++}, F^-	159 TO	159
				210 LO	175
E_u	-	+	Mn^{++}, F^-	255 TO	289
				260 LO	290
E_u	-	+	Mn^{++}, F^-	363 TO	362
				530 LO	514

Um auch die Formen der Normalschwingungen positiver Parität zu finden, muß das Transformationsverhalten der Auslenkungen der Ionen aus der Ruhelage untersucht werden.

Die klassische Gitterdynamik (siehe z.B. /56/) ergibt als Ausdruck für die allgemeine Bewegung eines Ions in einem Kristallgitter, dessen Bausteine zu Schwingungen um ihre Ruhelagen angeregt sind,

$$\bar{u}_{\alpha, \vartheta}(t) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}, j} \frac{\bar{e}_{\vartheta}(\vec{k}, j)}{\sqrt{m_{\vartheta}}} Q_{\vec{k}}^j(t) e^{i\vec{k} \cdot \vec{R}^{\alpha}}$$

Dabei bezeichnen j die Normalschwingung und $Q_{\vec{k}}^j(t)$ die entsprechende Normalkoordinate, α die EZ und ϑ das Ion in der EZ. Die Vektoren $\bar{e}_{\vartheta}(\vec{k}, j)$ sind die Polarisationsvektoren, die im allgemeinen komplex sind und die Eigenschaft

$$\bar{e}_{\vartheta}(-\vec{k}, j) = \bar{e}_{\vartheta}(\vec{k}, j)^*$$

haben. Ein möglicher Phasenfaktor wurde gleich Eins gesetzt. Eine analoge Relation gilt für die Normalkoordinaten. Umgekehrt kann man die Normalkoordinate $Q_{\vec{k}}^j(t)$ als Funktion der Auslenkungen $\bar{u}_{\alpha, \vartheta}(t)$ darstellen:

$$Q_{\vec{k}}^j(t) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{R}^{\alpha}, \vartheta} \sqrt{m_{\vartheta}} \bar{e}_{\vartheta}(\vec{k}, j)^* \cdot \bar{u}_{\alpha, \vartheta}(t) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{R}^{\alpha}}$$

Für $\vec{k}=0$ sind die Normalkoordinaten und die Polarisationsvektoren reell und die Vektoren $\bar{u}_{\alpha, \vartheta}$ translationsinvariant, so daß man

$$Q_{\vec{k}}^j(t) = \sum_{\vartheta} \sqrt{N m_{\vartheta}} \bar{e}_{\vartheta}(0, j) \cdot \bar{u}_{\alpha, \vartheta}(t)$$

hat. Die Normalkoordinate des j -ten Phononenzweiges ist also für $\vec{k}=0$ eine einfache Linearkombination der Auslenkungen der Ionen in der EZ. Die Faktorgruppenanalyse lieferte das Ergebnis, daß an den Schwingungen positiver Parität für $\vec{k}=0$ nur die F^- -Ionen beteiligt sind, so daß für diese Fälle $\sqrt{N m_{\vartheta}}$ als konstanter Faktor aus der Summe herausgezogen werden kann.

Es ist nun eine einfache gruppentheoretische Aufgabe, die Formen der Normalschwingungen positiver Parität für $\vec{k}=0$ zu finden. Dies gelingt mit Hilfe des Projektionsoperators $\tilde{P}_n^j$, der aus einer beliebigen normierbaren Funktion Ψ denjenigen Anteil "herausprojiziert", der sich wie die n -te Zeile der irreduziblen

Darstellung j transformiert, siehe z.B. /57/ §94, oder /51/ §5.2:

$$\psi_n^j = \tilde{P}_n^j \psi = \frac{1}{g} \sum_G \Gamma^j(G)_{nn}^* \tilde{G} \psi$$

Hier wird über alle Gruppenelemente G summiert. $\tilde{G}$ ist der entsprechende Operator, g die Gruppenordnung, l_j die Dimension der Darstellung und $\Gamma^j(G)_{nn}$ das Diagonalelement der Darstellungsmatrix für das Element G . Für eindimensionale Darstellungen ist $\Gamma^j(G)_{nn}$ gleich dem Charakter $\chi_j(G)$ des Elementes G . Hier gibt es nur eine Basisfunktion ψ_n^j . Für mehrdimensionale Darstellungen müssen die Darstellungsmatrizen explizit gegeben sein, wie z.B. in /51/, oder aber man geht von der Formel

$$\tilde{P}^j \psi = \frac{1}{g} \sum_G \chi_j(G)^* \tilde{G} \psi$$

aus, die die Summe aller Anteile von ψ angibt, die sich wie die Zeilen von j transformieren.

Wenn $\tilde{P}^j \psi$ nicht Null ist, ist es also eine Linearkombination von Basisfunktionen und damit selbst Basisfunktion in einer äquivalenten Darstellung. In /51/ ist eine Methode beschrieben, die es erlaubt, die anderen Basisfunktionen aus $\tilde{P}^j \psi$ zu gewinnen.

Da hier jedoch die Matrixelemente der Darstellung E_g bekannt sind, wird der Operator $\tilde{P}_n^j$ verwendet. Hat man auf irgend eine Weise eine Basisfunktion einer mehrdimensionalen irreduziblen Darstellung gefunden, kann man die anderen Funktionen erhalten, in dem man den Transfer- oder Shift-Operator, /96/,

$$\tilde{P}_{mn}^j = \frac{1}{g} \sum_G \Gamma^j(G)_{mn}^* \tilde{G}$$

für $m = 1, 2, \dots, l_j$ auf diese Basisfunktion anwendet.

Im vorliegenden Fall sind also Linearkombinationen der Auslenkungen der F^- -Ionen in der EZ gesucht, die sich wie die Darstellungen mit positivem Charakter für $\{I|O\}$ transformieren:

Dazu wird $\tilde{P}_n^j$, wobei $j = A_{1g}, A_{2g}, B_{1g}, B_{2g}, E_g$, auf die Linearkombination $\sum_{\vec{s}} \vec{e}_{\vec{s}} \cdot \vec{u}_{\vec{s}}$ angewendet und nach Linearkombinationen gesucht, die der Bedingung

$$\hat{P}_n^j \sum_j \vec{e}_j^{j,n} \cdot \vec{u}_j = \sum_j \vec{e}_j^{j,n} \cdot \vec{u}_j$$

genügen. Summiert wird über die vier F^- -Ionen der EZ. Die Komponenten des Vektors $\vec{e}_j^{j,n}$ sind reell und vom Betrage 1. Das Ergebnis ist in der Tabelle 4 zusammengestellt. Die Auslenkungen sind natürlich zeitabhängig, so daß Tabelle 4 und die Abb. 8 nur ein Momentanbild darstellen.

Tabelle 4. Die Normalkoordinaten positiver Parität für $\vec{k} = 0$

A_{1g}	$(x_1 - y_1) - (x_2 - y_2) + (x_5 + y_5) - (x_4 + y_4)$
A_{2g}	$(x_1 + y_1) - (x_2 + y_2) - (x_5 - y_5) + (x_4 - y_4)$
B_{1g}	$(x_1 + y_1) - (x_2 + y_2) + (x_5 - y_5) - (x_4 - y_4)$
B_{2g}	$(x_1 - y_1) - (x_2 - y_2) - (x_5 + y_5) + (x_4 + y_4)$
E_g^1	$(z_1 - z_2) - (z_5 - z_4)$
E_g^2	$(z_1 - z_2) + (z_5 - z_4)$

Die Indizes in der Tabelle beziehen sich auf Abb. 1. Verwendet man für die Darstellung E_g nur den Projektionsoperator $\tilde{P}^j$, erhält man die oben angegebene Information nicht, sondern nur das Ergebnis, daß die F^- -Ionen in der z-Richtung und die Nummern 1 und 2 bzw. 5 und 4 gegeneinander schwingen. Für die obige Tabelle wurden die Darstellungsmatrizen aus dem Buch von Cornwell übernommen:

$$\begin{array}{cccc}
 (E|0), (I|0) & (C_2^Z|0), (\sigma_h|0) & (C_4^Z|\vec{\tau}), (S_4^Z|\vec{\tau}) & (\overline{C}_4^Z|\vec{\tau}), (\overline{S}_4^Z|\vec{\tau}) \\
 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}
 \end{array}$$

$$\begin{array}{cccc}
 (C_2^X|\vec{\tau}), (\sigma^X|\vec{\tau}) & (C_2^Y|\vec{\tau}), (\sigma^Y|\vec{\tau}) & (C_2^d|0), (\sigma^d|0) & (C_2^{d'}|0), (\sigma^{d'}|0) \\
 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}
 \end{array}$$

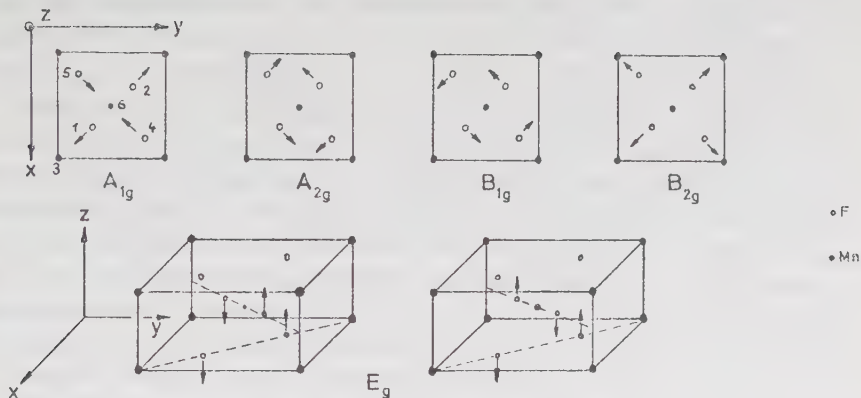


Abb. 8 Die Normalkoordinaten der Phononen positiver Parität für $\vec{k} = 0$.

Mit einer anderen Wahl der Darstellungsmatrizen erhält man im allgemeinen andere Basisfunktionen für die E_g -Darstellung, die jedoch Linearkombinationen der oben angegebenen sind. In Abb. 8 ist die Form der Normalschwingungen dargestellt. Man kann das Ergebnis dieser Analyse für das A_{2g} -, das B_{1g} - und das E_g -Phonon in folgender Weise interpretieren: Faßt man die Ionen 4,5,6 und 1,2',3 in Abb. 1 jeweils als lineare Moleküle auf, (2' ist das zu 2 äquivalente Ion in der benachbarten EZ und geht aus 2 durch Addition des Gittervektors $(a, -a, 0)$ hervor), dann kann man die erwähnten Schwingungen als Rotations-schwingungen dieser Moleküle ansehen. Die Drehachsen sind die Flächendiagonalen in der isotropen Ebene für das E_g -Phonon und die z-Achse für das A_{2g} - und B_{1g} -Phonon, wobei hier die Drehbewegungen der Moleküle einmal gleich- und das andere Mal entgegengesetzt gerichtet sind. Auf diese Annahme gegründet, versuchte Matossi /54/ für das isomorphe TiO_2 die Kraftkonstanten aus den beobachteten Frequenzen zu berechnen. Er fand, daß die Kraftkonstante längs des Abstandes I in Abb. 1 um den Faktor 30 größer als die längs des Abstandes II ist. Dies würde die

obige Annahme unterstützen. Allerdings beruhen diese Werte auf der Zuordnung der Linien und Banden, die im Ramaneffekt und in IR beobachtet werden. Die Zuordnung von Matossi ist nicht konsistent mit derjenigen von Porto et al. /58/.

Die vier im Ramaneffekt zu beobachtenden Phononen sind aufgrund der Ramantensoren in Tabelle 2 nur dann eindeutig zu klassifizieren, wenn das Achsensystem des Kristalls bekannt ist. Fallen das Achsensystem des Kristalls in Abb. 1 und das Koordinatensystem, auf das die Ramantensoren bezogen werden, zusammen, sind die Ramantensoren durch Tabelle 2 gegeben. Werden die Tensoren jedoch auf ein Laborsystem bezogen, dessen x-y-Achsen parallel zu den Winkelhalbierenden in der isotropen Ebene des Kristallsystems verlaufen, vertauschen die Ramantensoren B_{1g} und B_{2g} ihre Rollen. In diesem Fall werden die in den entsprechenden Streugeometrien beobachteten Linien vertauscht dem B_{1g} - bzw. B_{2g} -Phonon zugeordnet.

Die Phononenspektren der Kristalle der Rutilgruppe sind jedoch bekannt, /58/, so daß das Ramanspektrum tatsächlich zur Orientierung des Kristalls dienen kann.

Die Unterscheidung von A_{1g} - und B_{1g} -Phononen gelingt nur über das (zz)-Element des Streutensors. Als Streugeometrie ist also $x(zz)y$ oder $y(zz)x$ zu wählen. Beide Male sind die (xx)- und (yy)-Komponenten des Streutensors und damit das B_{1g} -Phonon nicht zu beobachten. Um dieses auch zu untersuchen, muß der Kristall gedreht werden.

Aus experimentellen Gründen war es jedoch notwendig, eine Streuanordnung zu verwenden, die es erlaubte, alle Phononen ohne Drehung des Kristalls zu beobachten. Das A_{1g} -Phonon wurde deshalb in der (xx)- oder (yy)-Geometrie beobachtet und erscheint somit in den Abb. 9 und 10 in derselben Streugeometrie wie das B_{1g} - oder das B_{2g} -Phonon, je nachdem der Kristall senkrecht zu den Winkelhalbierenden oder den Achsen in der isotropen Ebene geschnitten war.

2.3. Temperaturverhalten der Phononen

Die Phononenspektren von MnF_2 wurden im Temperaturbereich von etwa 10K bis Raumtemperatur, die von MgF_2 von etwa 65K bis Raumtemperatur untersucht.

Das MnF_2 wurde mit der 476,5nm - Linie erregt, weil nach /59/, siehe auch Abb. 55 , die Absorption im sichtbaren Bereich in der Umgebung dieser Laserlinie am geringsten ist, so daß nur mit geringer Aufheizung des Kristalls im Streuzentrum zu rechnen ist. Die Laserleistung betrug etwa 150 mW im Streuzentrum und die Spaltbreite des Spektrographen war auf etwa 5 cm^{-1} eingestellt.

Bei MgF_2 wurde die stärkere 514,5nm - Linie verwendet, weil der Kristall im sichtbaren Bereich praktisch nicht absorbiert. Die Laserleistung nach den verschiedenen optischen Elementen der experimentellen Anordnung, wie Spiegeln, Linsen und Fenster, betrug etwa 300 mW und die Spaltbreite ebenfalls etwa 5 cm^{-1} . Die Wellenzahlen wurden im allgemeinen aus Spektren mit großer Spreizung bestimmt, wobei bei hohen Temperaturen auch die anti-stokes'schen Komponenten gemessen wurden. Der Fehler der Wellenzahlbestimmung wird auf etwa $0,5 - 1 \text{ cm}^{-1}$ für die schmalen Linien, für das B_{2g} -Phonon von MnF_2 auf etwa 1 cm^{-1} und für dasjenige von MgF_2 auf etwa 2 cm^{-1} , geschätzt.

Die Ergebnisse bei Raumtemperatur sind in Tabelle 5 zusammengestellt. Die Abbildungen 9 und 10 zeigen die Übersichtsspektren. Die Ergebnisse stimmen im wesentlichen mit denjenigen von Porto et al. /58/ überein. Die dort gemessenen Wellenzahlen weichen bis zu 2 cm^{-1} von den hier angegebenen ab, wobei jedoch dort keine Aussage über die Genauigkeit der Angabe gemacht wird.

Tabelle 5. Energie und relative Intensität der Phononen

	A_{1g}		B_{1g}		E_g		B_{2g}	
	$\omega[\text{cm}^{-1}]$	I_{rel}	$\omega[\text{cm}^{-1}]$	I_{rel}	$\omega[\text{cm}^{-1}]$	I_{rel}	$\omega[\text{cm}^{-1}]$	I_{rel}
MnF_2	342	1	61	1/64	247	1/2	477	1/6
MgF_2	408	1	92	1/10	293	1/2	514	1/25

Temperatur: 300K

Abb. 9.

Phononenspektren von MnF_2

bei 300K

Laser: 476.5 nm, 150 mW i.d. Probe

Spalt: 5 cm^{-1}

verschiedene Empfindlichkeiten

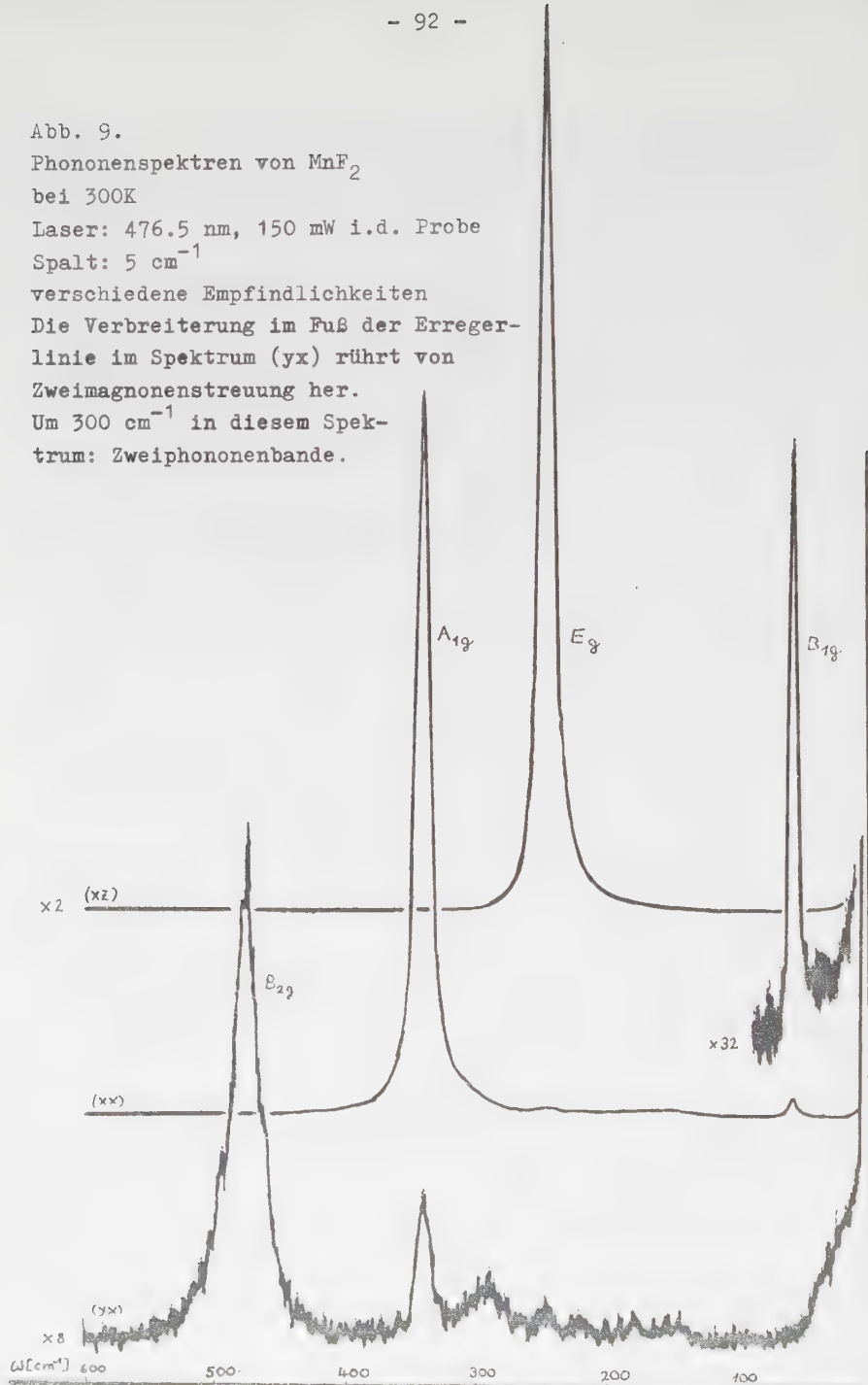
Die Verbreiterung im Fuß der Erreger-

linie im Spektrum (yx) rührt von

Zweimagnonenstreuung her.

Um 300 cm^{-1} in diesem Spek-

trum: Zweiphononenbande.



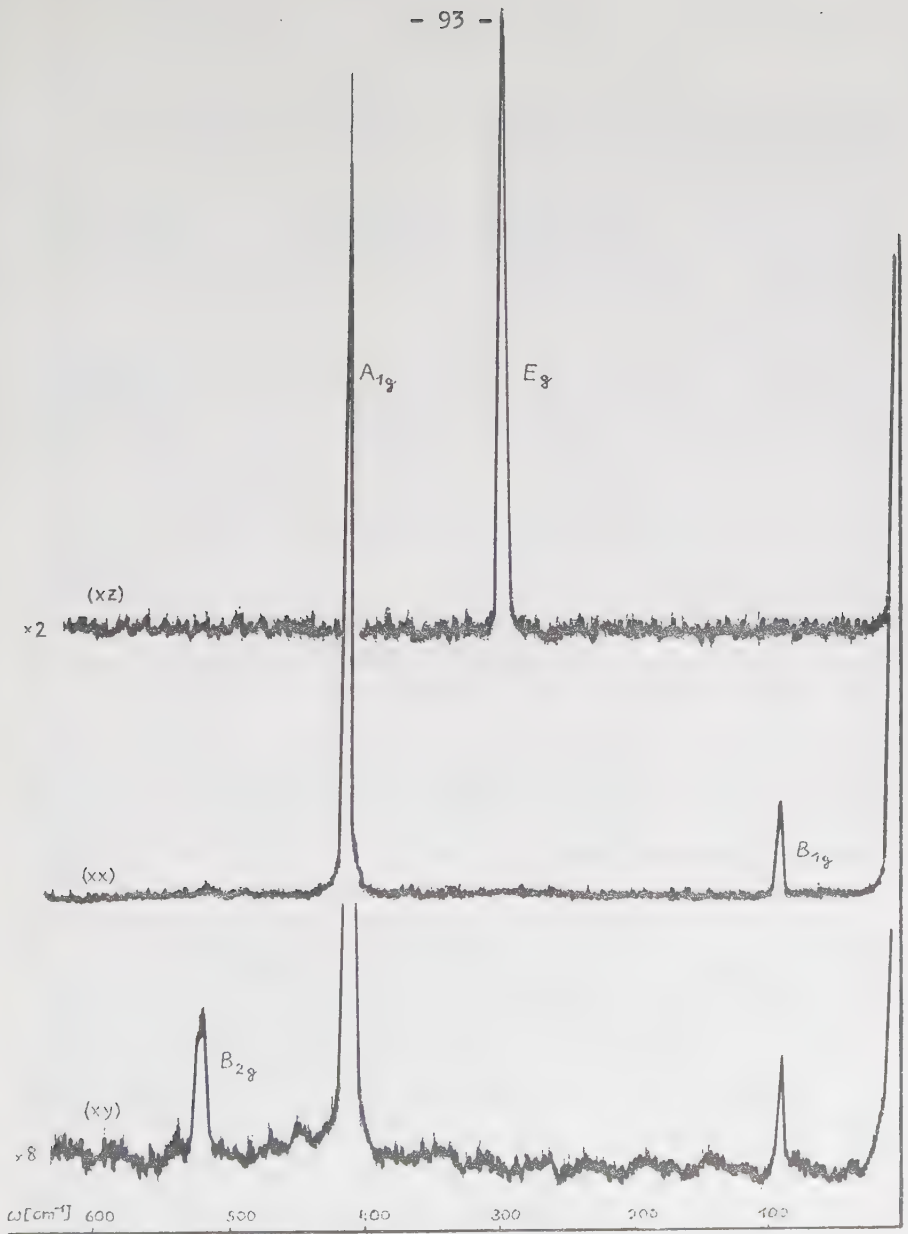


Abb. 10. Phononenspektren von MgF_2 bei 80K

Laser: 514.5 nm, 300 mW in der Probe

Spalt: 5 cm^{-1}

verschiedene Empfindlichkeiten

A_{1g} und B_{1g} treten in (xy) wegen Fehlorientierung auf.

I_{rel} ist die auf die Intensität des jeweiligen A_{1g} -Phonons bezogene relative Intensität.

Bei beiden Kristallen sind die drei Phononenlinien der Symmetrie A_{1g} , B_{1g} und E_g schmal und haben Lorentzprofil. Die B_{2g} -Linie von MnF_2 ist bei Raumtemperatur breit und asymmetrisch.

Bei MgF_2 ist sie wie die der anderen Phononen schmal und hat Lorentzprofil.

Im folgenden wird auch das Temperaturverhalten der Intensität der Phononen diskutiert. Es ist allgemein bekannt, mit welchen Schwierigkeiten die Messung von Intensitäten in Kristallen verbunden ist. Es seien nur die Absorption von Laserlicht und Streustrahlung durch den Kristall, die Temperaturabhängigkeit der Absorption, die Beeinflussung der Leistung des anregenden Lichtes durch mikroskopische Kristallfehler und durch Oberflächenfehler an der Eintrittsstelle und die Reflexion von Streulicht an Kristallflächen und -fehlern erwähnt.

Aus diesen Gründen wurde nicht der Versuch gemacht, die absolute Intensität der Phononen zu bestimmen oder eine Aussage über den Temperaturverlauf der Intensität des A_{1g} - und E_g -Phonons im gesamten Temperaturbereich von ca. 20K bis Raumtemperatur zu machen. In einem so großen Temperaturbereich ändern sich zu viele Parameter, als daß dem gemessenen Temperaturverlauf eine große Bedeutung zugemessen werden könnte.

2.3.1. Temperaturverhalten der Phononen von MnF_2

Die integrierte Intensität der beiden starken Phononen wurde in zusammenhängenden Meßreihen in verschiedenen Temperaturintervallen bestimmt, die zusammen den gesamten Temperaturbereich von 20K bis Raumtemperatur überdeckten und die so gewählt waren, daß die experimentellen Bedingungen konstant gehalten, oder wo sie nicht von außen zu beeinflussen waren, zumindest als konstant angenommen werden konnten. Die gemessene Intensität wurde mit dem Stokes'schen Faktor normiert. Dabei sollte sich ein konstanter Wert für das gesamte Temperaturintervall ergeben. Die Schwankungen der normierten Intensitäten um den Mittelwert betrugen maximal etwa 10% und lagen damit innerhalb des Meß- und Planimetrierfehlers.

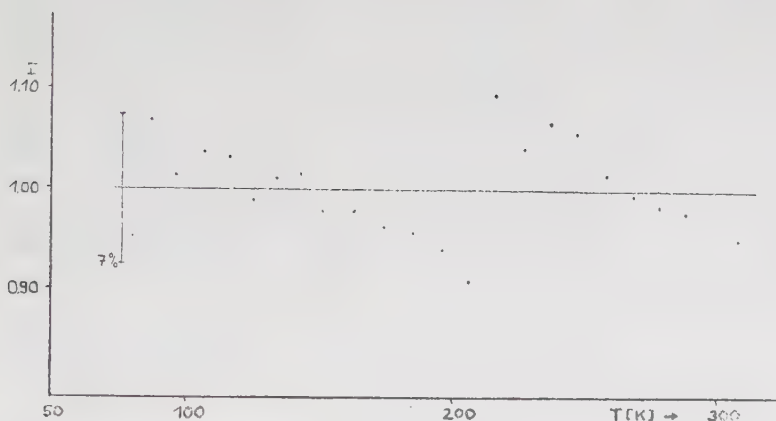


Abb. 11. Temperaturgang der normierten Intensität (siehe Text) des E_g -Phonons von MnF_2 .

Daraus wurde der für das Folgende wichtige Schluß gezogen, daß die Temperaturabhängigkeit der Intensität dieser beiden Phononen im gesamten Temperaturbereich allein durch den Stokes'schen Faktor $[1 - \exp(\beta \hbar \omega)]^{-1}$ bestimmt ist. In der Abb. 11 ist die wie oben beschrieben normierte Intensität des E_g -Phonons relativ zum Mittelwert aller Messungen im Temperaturbereich von 80K bis 308K aufgetragen. Wie man sieht, übersteigt die Schwankung den Wert 7% praktisch nicht, während die absolute Intensitätsänderung in diesem Temperaturbereich 35% beträgt. Der Knick bei etwa 200K ist auf eine Änderung der experimentellen Bedingungen, Evakuierung des Austauschgasraumes, zurückzuführen. Im Temperaturbereich unterhalb von 40K sollte sich die Intensität des E_g -Phonons praktisch nicht mehr ändern. Experimentell war es jedoch nicht möglich, diese Konstanz nachzuweisen. Weil jedoch kein Grund einzusehen ist, weshalb unterhalb von 40K eine krasse Änderung im Verhalten der beiden Phononen eintreten sollte, wurde auch in diesem Temperaturbereich normales Verhalten der beiden Phononen angenommen.

Die Annahme normalen Temperaturverhaltens von E_g - und A_{1g} -Phononen im gesamten Temperaturbereich ist die Grundlage für die Bestimmung der Intensitäten der anderen Phononen und der Zweimagnonenbanden. Die Schwankung der gemessenen und mit dem Stokes'schen Faktor normierten Intensitäten dieser beiden Phononen ist ein Maß für die Auswirkung der experimentellen Bedingungen auf die Intensitäten von Phononen und Zweimagnonen. Der Mittelwert der beiden normierten Intensitäten wurde als Korrekturfaktor zur Eliminierung der experimentell bedingten Schwankungen der Intensitäten der anderen Linien und Banden verwendet.

Die Ergebnisse der Messungen von Energie und Halbwertsbreite (HWB) der Phononen E_g , A_{1g} und B_{2g} sind in den Tabellen A1 und A2 im Anhang zusammengestellt. Bei den HWB ist zum Vergleich die HWB der Rayleighlinie mit angegeben.

Alle drei Phononenlinien zeigen das erwartete Temperaturverhalten. Die Energie nimmt bei Abkühlung wegen der Kontraktion des Gitters geringfügig zu und die HWB nimmt wegen der größeren Lebensdauer der Phononen ab. Gleichzeitig steigt die Maximumintensität an.

Die A_{1g} - und E_g -Linien sind sehr schmal. Ihre experimentellen HWB liegen in der Größenordnung der Spaltbreite und sind bei tiefen Temperaturen offensichtlich versuchsbedingt. Bei einer spektralen Spaltbreite von etwa $1,5 \text{ cm}^{-1}$ war bei 65K das Linienprofil von E_g - und A_{1g} -Phonon immer noch spaltbedingt.

Die B_{2g} -Linie ist im Vergleich dazu breit und bei Zimmertemperatur asymmetrisch. Beim Abkühlen kann die Ursache dafür festgestellt werden: Im Fuß der Linie taucht bei etwa 495 cm^{-1} eine weitere Linie, Abb. 12, auf. Diese Linie ist mit großer Wahrscheinlichkeit der erste Oberton des E_g -Phonons. Dafür sprechen drei Gründe: Zunächst ist 495 cm^{-1} ziemlich genau das Doppelte der Wellenzahl des E_g -Phonons in diesem Temperaturbereich, etwa 248 cm^{-1} . Zweitens ist der erste Oberton des $\vec{k}=0$ Phonons gruppentheoretisch in dieser Streugeometrie erlaubt, d.h. das symmetrische Kroneckerprodukt enthält neben A_{1g} und B_{1g} die Darstellung B_{2g} . Drittens zeigen viele Arbeiten über Ramanstreuung in der Nähe von Absorptionsstellen, siehe z.B. Kiefer /60/, daß durch Resonanzeffekt Obertöne verstärkt auftreten. Nach Abb. 55

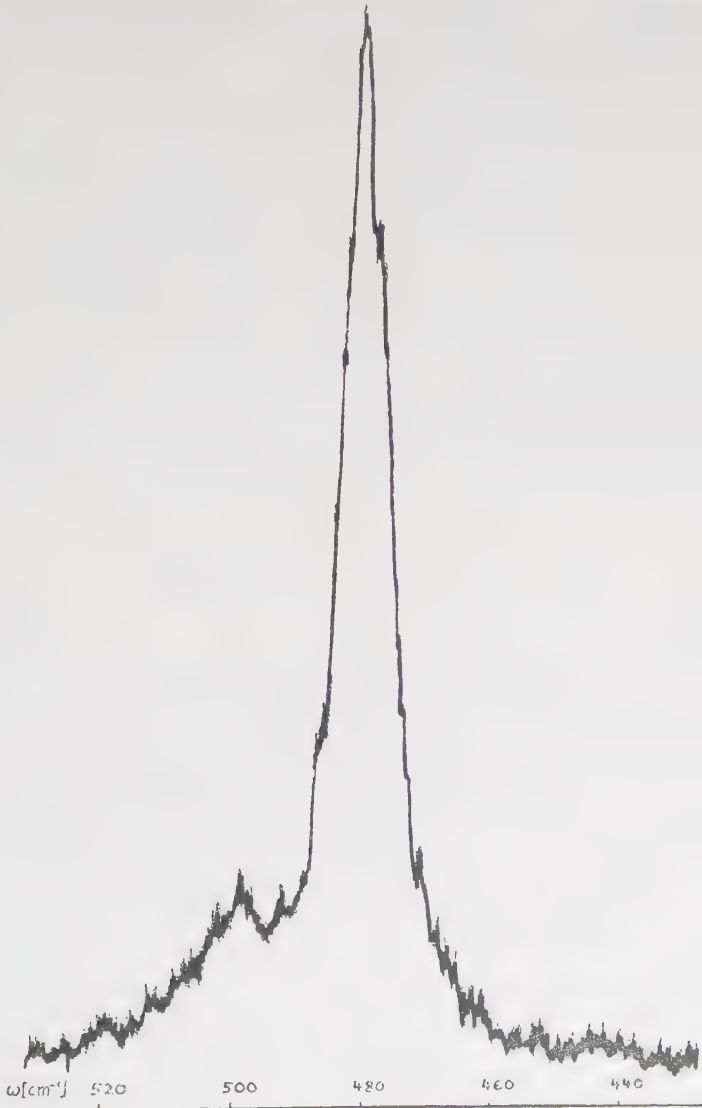


Abb. 12. Das B_{2g} -Phonon mit einer Zweiphononenlinie bei 495 cm^{-1} , vermutlich $(E_g)^2$, bei 80K.
Laser: 476.5 nm , 150 mW in der Probe
Spalt: 5 cm^{-1}

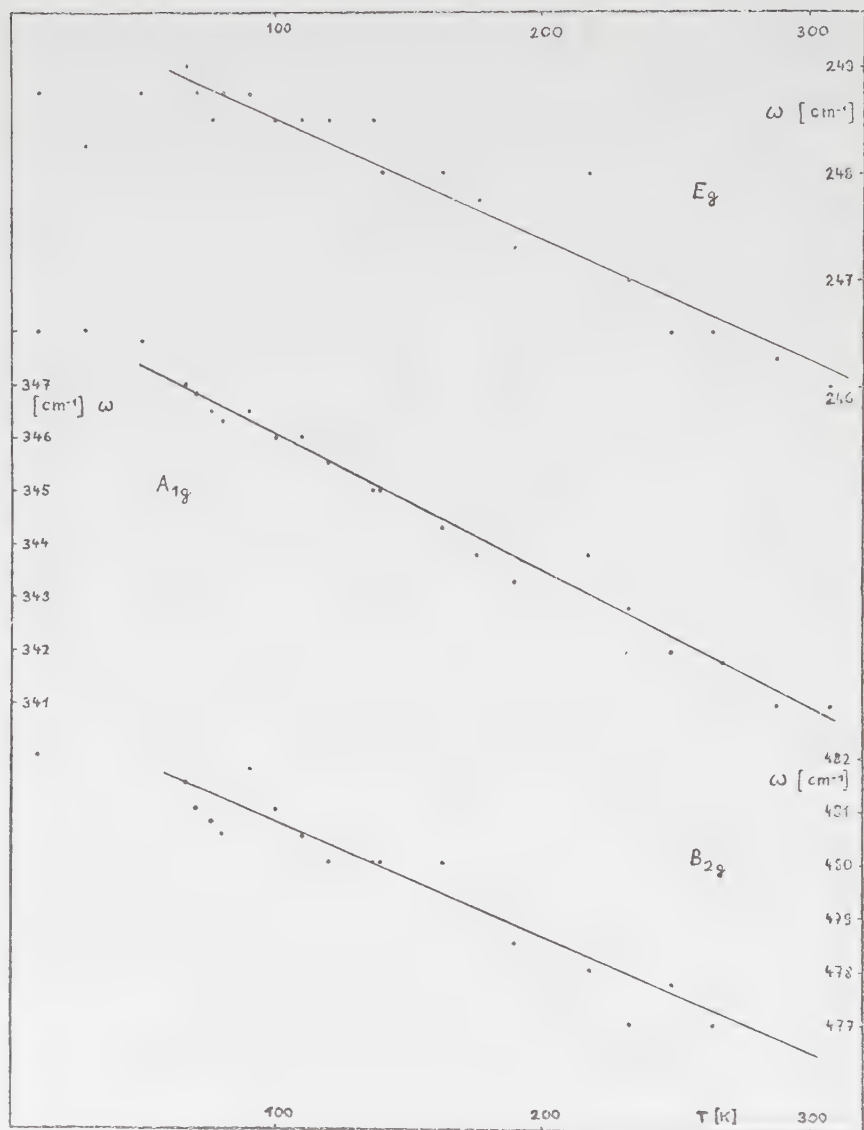


Abb. 13. Temperaturgang der Energie des E_g -, A_{1g} - und B_{2g} -Phonons von MnF_2 .

liegt die Energie der anregenden Photonen für die 476,5nm - Linie nur etwa 1600 cm^{-1} über dem Maximum der ${}^4\text{T}_{1g}$ -Absorptionsbande. Die HWB des B_{2g} -Phonons ist wesentlich größer als die der anderen Phononen. Sie liegt auch bei tiefen Temperaturen noch deutlich über der spektralen Spaltbreite. Dieses Verhalten ist verschieden von dem des B_{2g} -Phonons von MgF_2 , wie aus Abb. 9 zu ersehen ist. Als Ursache dafür kommt die **Fermiresonanz** mit dem 2. Oberton von E_g in Frage.

Die Energiezunahme der drei Phononen E_g , A_{1g} und B_{2g} bei Temperaturabnahme ist sehr gering, liegt jedoch für das A_{1g} - und B_{2g} -Phonon mit 6 cm^{-1} bzw. 5 cm^{-1} deutlich über dem Meßfehler. Für das niederenergetischere E_g -Phonon liegt die Zunahme immerhin noch bei 2 cm^{-1} , siehe Abb. 13. Die Zunahme liegt bei etwa 1% und damit in der Größenordnung der Änderung der Gitterkonstante c. Durch lineare Approximation der Kurve $\Delta l_c/l_c$ in Abb. 7 findet man

$$l(T) \approx l_0(1 + 10^{-5}T).$$

Im Temperaturbereich von etwa 60K bis Raumtemperatur wurde für jedes Phonon eine Ausgleichsgerade durch die Meßpunkte der Energie berechnet. Die Gleichungen sind in Tabelle A1 angegeben. Man findet Temperaturkoeffizienten, die für alle drei Phononen größenordnungsmäßig, und für das E_g - und B_{2g} -Phonon auch zahlenmäßig übereinstimmen. Unterhalb von 60K wurden nur wenige Wellenzahlmessungen durchgeführt, die aber zeigen, daß innerhalb der Meßgenauigkeit praktisch keine Änderung mehr stattfindet.

Das B_{1g} -Phonon zeigt im Gegensatz zu den eben diskutierten ein völlig anderes Verhalten.

Die Linie kann bis etwa 65K sicher verfolgt werden, Abb. 14. Man stellt dabei eine Abnahme der Energie und der Intensität fest. Eine Abnahme der Intensität erwartet man aufgrund des Stokes'schen Faktors. Allerdings ist die Abnahme so stark, daß die Linie bei tiefen Temperaturen wegen ihrer geringen Intensität nicht mehr nachgewiesen werden kann. Als Erschwerung machte sich hier die geringe Fehlorientierung des Kristalls aufgrund der schlechten Justiermöglichkeit, siehe II.1.1., bemerkbar.

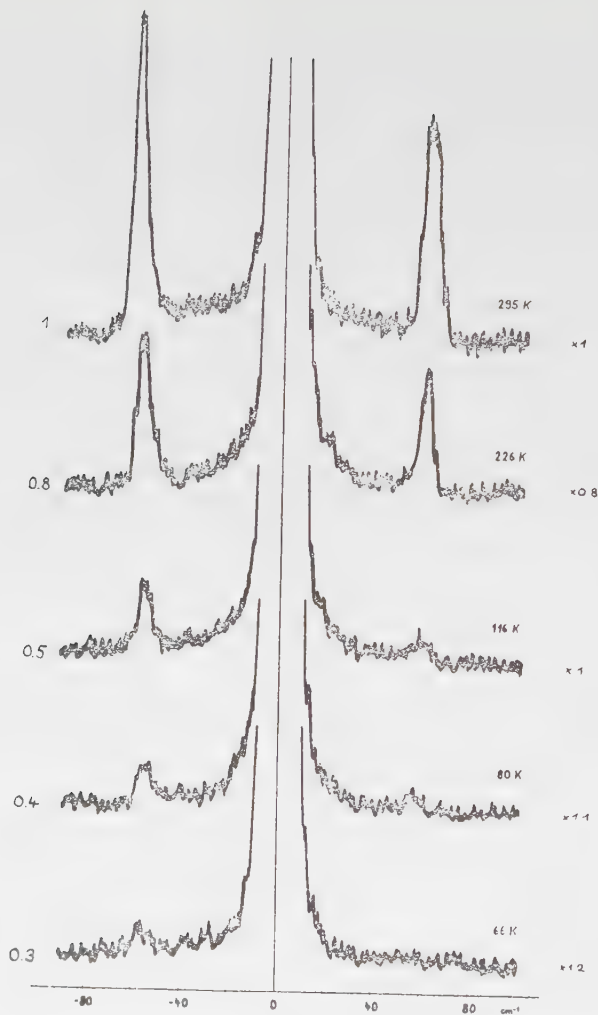


Abb. 14. B_{1g} -Phonon von MnF_2 bei verschiedenen Temperaturen.

Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.

Spalt: 4 cm^{-1} .

Die Änderungen der exp. Bedingungen wirken sich wie Änderungen der Empfindlichkeit aus. Die Empfindlichkeitsfaktoren sind rechts angegeben.

Links ist die auf den Wert bei 295K normierte theoretische Intensität angegeben.

Die in anderen Streugeometrien erlaubten Zweimagnonenbanden schlugen durch, so daß ein leicht strukturierter und temperaturabhängiger Untergrund vorhanden war, auf dem eine äußerst intensitätsschwache Linie gesucht wurde.

Die Abnahme der Energie ist erstaunlich groß. Sie beträgt bis 65K etwa 8%. In Abb. 15 ist der Verlauf graphisch dargestellt. Wie man sieht, liegen die Meßwerte relativ gut auf einer Geraden, so daß eine Ausgleichsgerade berechnet wurde:

$$\omega_{B_{1g}} = 53.9 (1 + 4.5 \cdot 10^{-4} T) .$$

Die Anzahl der Meßpunkte betrug 44. Der auf OK extrapolierte Wert der Energie beträgt etwa 54 cm^{-1} und entspricht damit der Energie der Magnonen auf der Oberfläche der BZ.

Wie bereits erwähnt, erwartet man aufgrund des Stokes'schen Faktors eine Abnahme der Intensität der Linie. Wegen der niedrigen Energie von etwa 60 cm^{-1} sollte die Intensität von Raumtemperatur bis 5K um etwa den Faktor 4 abnehmen, so daß man erwartet, die Linie bis zu den niedrigsten Temperaturen verfolgen zu können. Die Maximumsintensität bei Raumtemperatur lag in der Größenordnung von 200 cps. Eine solche von 50 cps bei 5 K entspricht grob der Maximumsintensität der in Abb. 27 wiedergegebenen Zweimagnonenbande und sollte somit leicht nachweisbar sein. Tatsächlich konnte das Phonon wie erwähnt bei tiefen Temperaturen praktisch nicht mehr nachgewiesen werden. Die Abnahme scheint wesentlich stärker als nach dem Stokes'schen Faktor zu sein. In Abb. 16 ist die korrigierte, mit dem Stokes'schen Faktor normierte und auf den Wert bei 308K bezogene Intensität gegen die Temperatur aufgetragen. Man erwartet eine horizontale Gerade bei dem Ordinatenwert 1, findet jedoch eine deutlich fallende Gerade. Der Fehler der korrigierten Intensität nimmt natürlich mit abnehmender Temperatur zu, weil bei intensitätsschwachen Linien das Rauschen oder Fehler bei der Wahl des Untergrundes stärker ins Gewicht fallen. In Abb. 16 wurde deshalb bei ca. 100K ein Fehlerbalken für 100% und bei ca. 300K für 15% Fehler in der Intensitätsmessung eingezeichnet. Selbst mit diesem extremen Fehlern erhält man noch eine fallende Kurve. Außerdem spricht

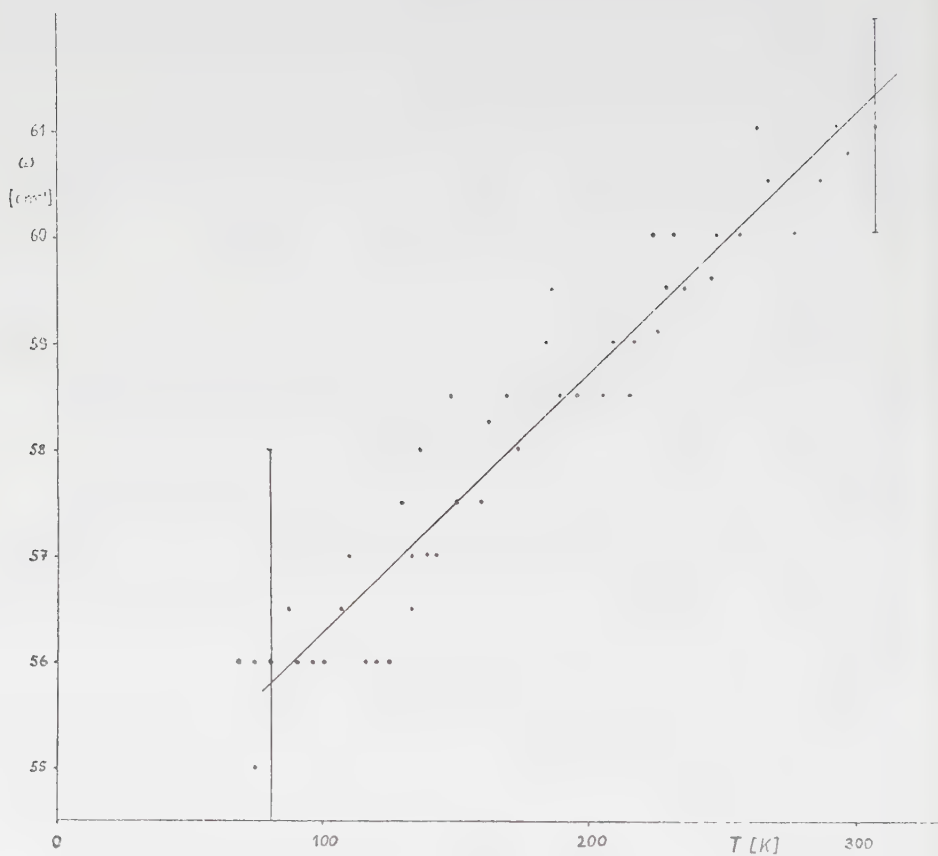


Abb. 15. Temperaturabhängigkeit der Energie des B_{1g} -Phonons von MnF_2 .

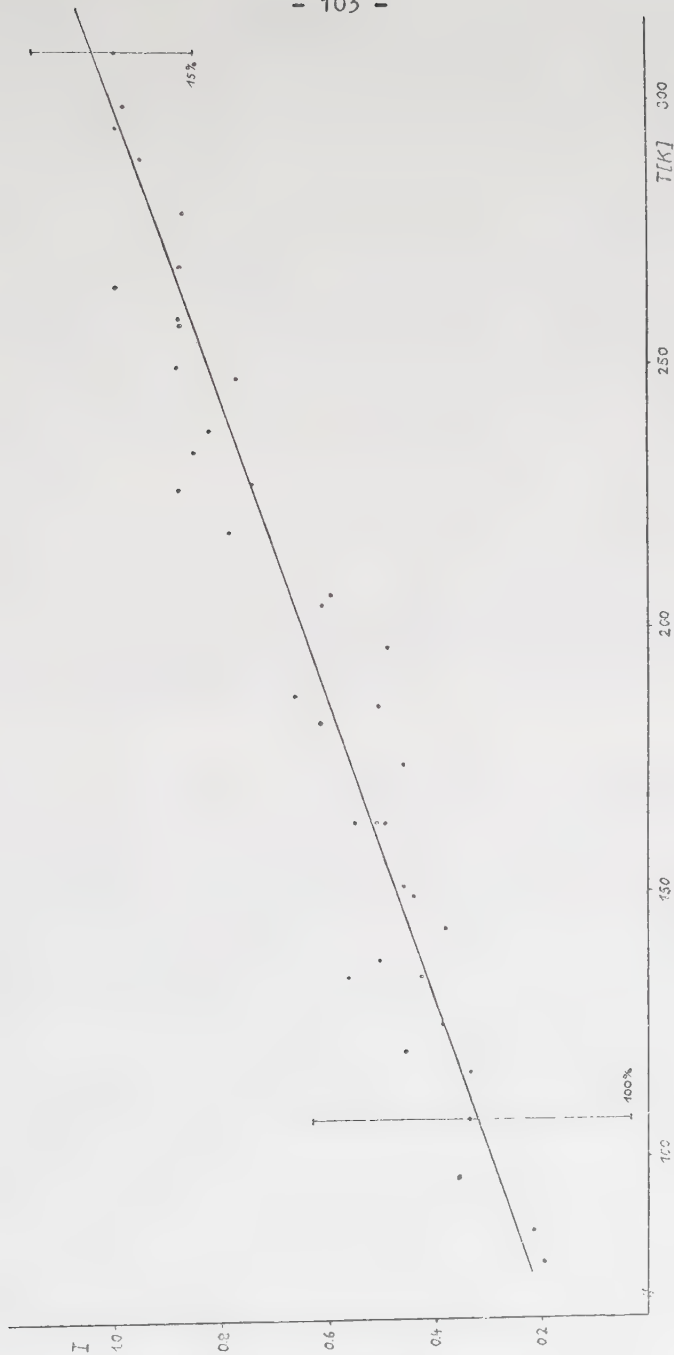


Abb. 16. Temperaturgang der normierten Intensität des B_{1g} -Phonons von MnF_2 , siehe Text.

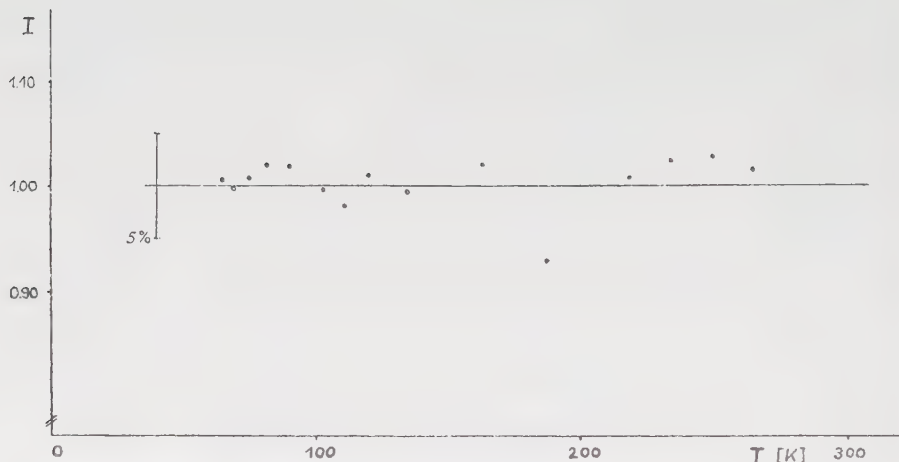


Abb. 17. Temperaturgang der normierten Intensität des B_{2g} -Phonons von MnF_2 .

die relativ geringe Schwankung der Meßwerte um die Ausgleichsgerade für wesentlich kleinere Fehler. Die Meßwerte wurden aus drei von einander unabhängigen Meßreihen bestimmt, so daß man experimentell bedingte systematische Fehler ausschließen kann. Um die Güte des bereits beschriebenen Korrekturverfahrens zu prüfen, wurde die beobachtete Intensität des B_{2g} -Phonons und des Obertons bei 495 cm^{-1} nach Entzerrung der beiden Linien auf dieselbe Weise korrigiert und normiert. Das Ergebnis ist in den Abb. 17 und 18 dargestellt. Die Beobachtung deckt sich sehr gut mit dem, was man theoretisch erwartet, so daß man dem beobachteten Verhalten des B_{1g} -Phonons physikalische Bedeutung beimessen muß. In diesem Zusammenhang ist es wichtig festzustellen, daß sich die HWB des Phonons nicht ändert. Sie ist im gesamten Temperaturbereich wie beim E_g - und A_{1g} -Phonon experimentell bedingt. Buchanan et al. /61/ geben in ihrer Arbeit über die Zweimagnonenbanden im Mischkristall $(MnZn)F_2$ Werte für die Energien der Phononen von MnF_2 bei den drei Temperaturen 300, 80 und 10K an,

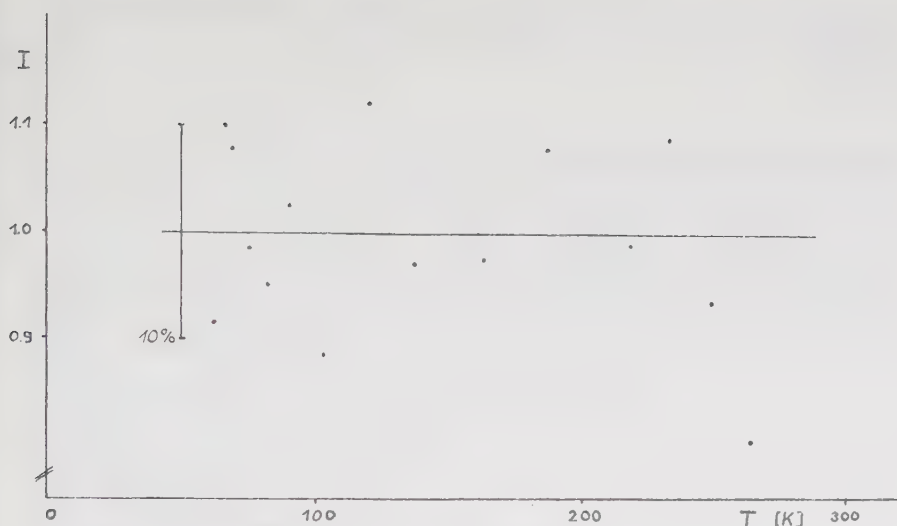


Abb. 18. Temperaturgang der normierten Intensität des Obertons bei 495 cm^{-1} von MnF_2 .

dabei auch für das B_{1g} -Phonon, nämlich $59, 51$ und 52 cm^{-1} . Die prozentuale Änderung beträgt somit 13% , wesentlich mehr, als die hier gemessenen 8% . Aufgrund der vorliegenden Untersuchungen der Intensität wird vermutet, daß in jener Arbeit bei der LN_2 - und LHe -Temperatur gar nicht das B_{1g} -Phonon beobachtet wurde, was damit erklärbar ist, daß der Kristall nur bei den drei Temperaturen und wahrscheinlich unter verschiedenen experimentellen Bedingungen, mit und ohne Kryostat, untersucht wurde. Die dort angegebenen Werte für die anderen Phononen stimmen gut mit den hier beobachteten überein.

Die Ursache für das anomale Verhalten des B_{1g} -Phonons ist unklar. Da MnF_2 einen magnetischen Phasenübergang erfährt, liegt die Frage nahe, ob das beobachtete Verhalten mit der antiferromagnetischen Ordnung zusammenhängt. Bei der Abnahme der Energie mit der Temperatur kann man auch danach fragen, inwieweit dies eine Eigenschaft des Rutilgitters selbst ist. Um hier einen An-

haltungspunkt zu erhalten, wurde das dem MnF_2 analoge MgF_2 untersucht.

2.3.2. Temperaturverhalten der Phononen von MgF_2

MgF_2 bildet Kristalle derselben Raumgruppe wie MnF_2 , ist jedoch nicht magnetisch. Es kann deshalb in gewisser Weise als Vergleichskristall angesehen werden, an dem das Temperaturverhalten der ramanaktiven Phononen der Rutilstruktur ohne mögliche Beeinflussung durch einen magnetischen Phasenübergang beobachtet werden kann. Allerdings beträgt die Masse des Mg-Ions nur etwa die Hälfte derjenigen von Mn und auch die Elektronenkonfiguration und Größe sind wesentlich verschieden, so daß die Messungen nur Anhaltspunkte sein können. Es wäre in diesem Zusammenhang wünschenswert gewesen, die anderen Kristalle dieser Gruppe, das Rutil TiO_2 selbst und ZnF_2 und FeF_2 , untersuchen zu können. Von diesen Kristallen ist FeF_2 wie MnF_2 bei tiefen Temperaturen antiferromagnetisch.

Der Kristall wurde im Temperaturbereich von etwa 65K bis Raumtemperatur besonders im Hinblick auf das Verhalten des B_{1g} -Phonons untersucht. Als Intensitätsstandard wurde wieder die integrierte Intensität des A_{1g} - und E_g -Phonons gemessen. Das B_{2g} -Phonon ist bei diesem Kristall recht intensitätsschwach. Die registrierte Maximumintensität lag nur etwa in der Größenordnung der der Zweimagnonenbanden von MnF_2 , so daß auf eine eingehende Untersuchung verzichtet wurde. Die HWB aller vier Linien liegen in der Größenordnung der Spaltbreite, sind also offensichtlich experimentell bedingt.

Wegen der höheren Energie des B_{1g} -Phonons, etwa 90 cm^{-1} , sollte die Intensität nach dem Stokes'schen Faktor bei Abkühlung auf 5K auf etwa 1/3 des Wertes bei 300K abnehmen. Unterhalb von 65K findet nur mehr eine Änderung von etwa 5% statt, so daß es genügt, MgF_2 nur im LN_2 -Temperaturbereich zu untersuchen.

Die Intensität des B_{1g} -Phonons wurde wie bei MnF_2 korrigiert, normiert und auf den Mittelwert aller dieser Werte bezogen. Die Abb. 19 zeigt das Ergebnis. Sie beweist, daß sich die Intensität des Phonons innerhalb der Meßgenauigkeit proportional zum Stokes-

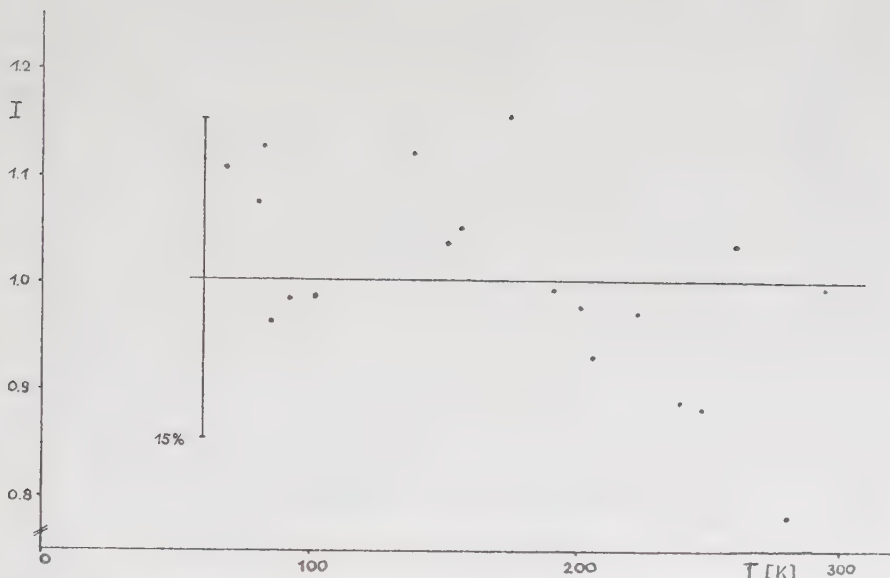


Abb. 19. Korrigierte und normierte Intensität (siehe Text)
des B_{1g} -Phonons von MgF_2 .

faktor mit der Temperatur ändert, im krassen Gegensatz zum Ergebnis bei MnF_2 .

Bei der Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Energie dieses Phonons dagegen findet man dasselbe Verhalten wie bei MnF_2 . Die Energie nimmt mit der Temperatur nach Abb. 20 innerhalb der Meßgenauigkeit linear ab. Die Ausgleichsrechnung liefert folgende Gleichung:

$$\omega_{B_{1g}} = 88.8 (1 + 1.1 \cdot 10^{-4} T).$$

Ein ähnliches Verhalten zeigt das B_{1g} -Phonon von ZnF_2 ($\omega = 70 \text{ cm}^{-1}$ bei 300K) nach den drei von Buchanan et al. /61/ angegebenen Werten. Aus diesen ergibt sich ein Temperaturkoeffizient von etwa $2.5 \cdot 10^{-4}$, also ein Wert zwischen jenen von MgF_2 und MnF_2 . Dazu muß jedoch bemerkt werden, daß die Autoren den Wert bei 300K nicht selbst bestimmten, sondern von Porto et al. /58/ übernahmen.

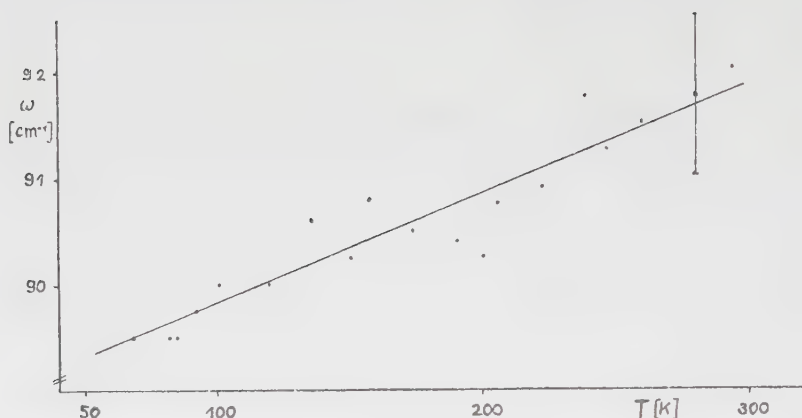


Abb. 20. Temperaturabhängigkeit der Energie des B_{1g} -Phonons von MgF_2 .

Offensichtlich ist die Energieabnahme des B_{1g} -Phonons mit der Temperatur eine allgemeine Eigenschaft des Gitters, denn man kann auch bei MgF_2 und ZnF_2 von einer Kontraktion des Gitters ausgehen. Die Ergebnisse der Untersuchung der Intensität und der Energie sind in Tabelle A3 im Anhang zusammengestellt. In der Tabelle A4 im Anhang ist das Temperaturverhalten der drei anderen Phononen angegeben. Die Energie nimmt bei Abkühlung des Kristalls zu. Die relative Zunahme liegt wie bei MnF_2 in der Größenordnung von 1%. In der Abb. 21 ist die Temperaturabhängigkeit der Energie graphisch dargestellt. Innerhalb der Meßgenauigkeit erhält man wie bei MnF_2 eine lineare Änderung. Die Gleichungen der Ausgleichsgeraden sind in der Tabelle A4 mit angegeben. Es ist interessant, daß die Temperaturkoeffizienten zahlenmäßig nahezu mit denjenigen von MnF_2 übereinstimmen. Schätzt man aus den Meßwerten von Buchanan et al. /61/ Temperaturkoeffizienten für diese drei Phononen von ZnF_2 ab, so erhält man größenordnungsmäßig $6 \cdot 10^{-5}$, ein ähnlicher Wert wie für MnF_2 oder MgF_2 .

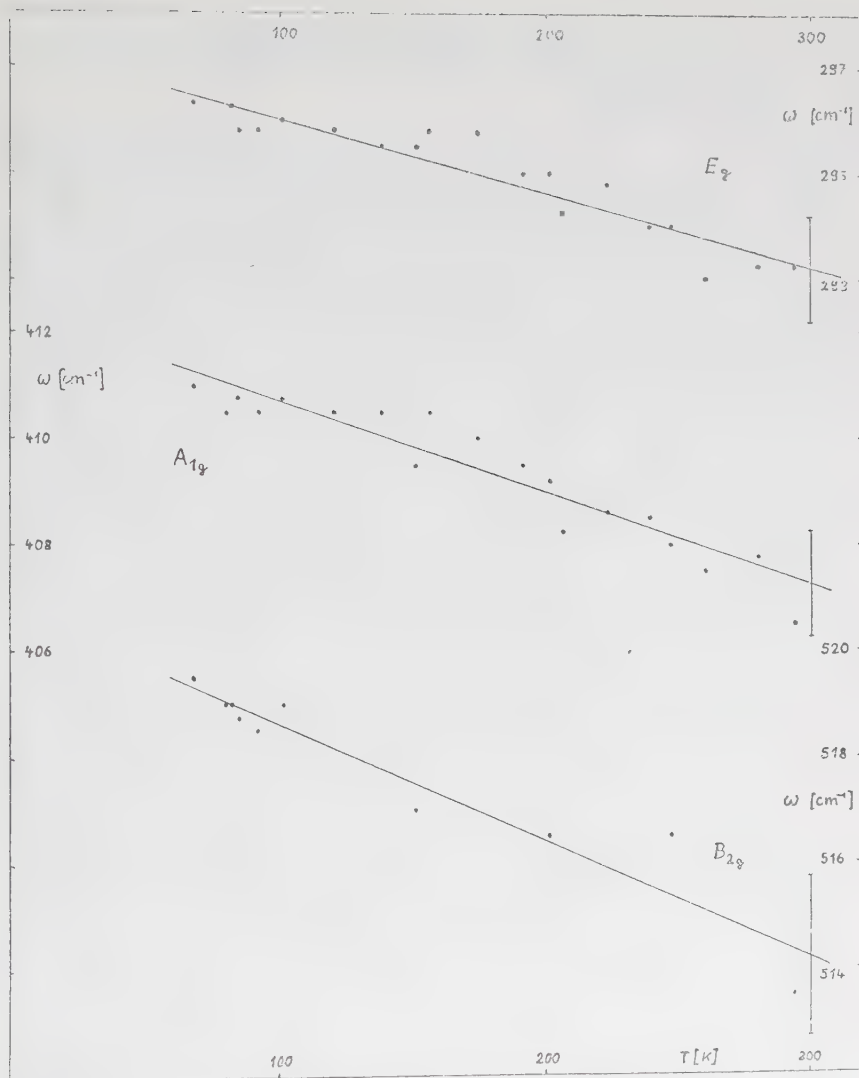


Abb. 21. Temperaturabhängigkeit der Energie des E_g -, A_{1g} - und B_{2g} -Phonons von MgF_2 .

2.3.3. Zusammenfassender Vergleich der Messungen an

MnF₂ und MgF₂

Die vorliegenden Messungen zeigen, daß die Analogie der beiden Kristalle sehr weitgehend ist, obwohl ein wichtiger Unterschied besteht. Die beiden starken Phononen, A_{1g} und E_g , haben etwa dasselbe Intensitätsverhältnis. Bei Abkühlung nehmen die HWB ab und sind bei tiefen Temperaturen spaltbedingt. Selbst die geringfügig größere HWB des A_{1g} -Phonons kann in beiden Kristallen beobachtet werden. Die Energien nehmen mit fallender Temperatur in gleicher Größenordnung zu. Das B_{2g} -Phonon von MnF₂ verhält sich wie die beiden starken Phononen. Bei MgF₂ wurde nur die Energie gemessen, aber auch hier ein ähnliches Verhalten gefunden. Beim B_{1g} -Phonon wird ein wesentlicher Unterschied beobachtet. Während dieses Phonon von MgF₂ sich hinsichtlich der Intensität erwartungsgemäß verhält, wird bei MnF₂ eine wesentlich stärkere Abnahme als nach dem Stokes'schen Faktor beobachtet. Die Abnahme der Energie erweist sich dagegen als Eigenschaft des Gitters. Die Abnahme ist bei MnF₂ jedoch wesentlich stärker als bei MgF₂.

Eine ähnliche Abnahme der Intensität und Energie wird z.B. bei den "soft-modes" in ferroelektrischen Kristallen beobachtet, siehe Hammer /46/. Sie haben ihre Ursache in einem kristallographischen Phasenübergang. Das Gitter von MnF₂ bleibt jedoch trotz des magnetischen Phasenübergangs tetragonal raumzentriert, so daß man nach einer anderen Erklärung für das beobachtete Verhalten suchen muß. Hier kann möglicherweise die Untersuchung des B_{1g} -Phonons von FeF₂, das bei 73 cm^{-1} liegt, hilfreich sein.

3. Ramanspektroskopische Untersuchung der Spinwellen

3.1. Gruppentheoretische Aussagen

Bei der Untersuchung der Spinwellen muß man naturgemäß den Spin der Ionen als wesentliches Merkmal bei allen Symmetrietransformationen berücksichtigen. Jedem Ion hat man statt einer skalaren Wellenfunktion nun einen Spinor zuzuordnen. Spinoren transformieren sich bei Koordinatentransformationen wie die irreduziblen Darstellungen der sogenannten Doppelgruppen des Hamiltonoperators. Bei der Beschreibung eines magnetisch geordneten Kristalls muß der Zeitinversionsoperator, siehe z.B. Wigner /62/, Kapitel 26, berücksichtigt werden, der den Spin umkehrt. Dieser Operator ist erstens antilinear und zweitens transformiert er das Skalarprodukt in das konjugiert komplexe. Diese Eigenschaften werden nach Wigner als Antiunitarität bezeichnet.

Die Gruppe M der Symmetrietransformationen eines magnetisch geordneten Kristalls enthält bei Berücksichtigung des Zeitinversionsoperators sowohl unitäre als auch antiunitäre Operatoren. Die unitären Operatoren bilden einen Normalteiler G, so daß sich M als Summe von Nebenklassen bezüglich G schreiben läßt:

$$M = G + AG,$$

wobei A ein antiunitärer Operator ist. Auf dieser Zerlegung gründet sich die Bezeichnungsweise der magnetischen Gruppen, siehe Bradley und Davies /63/: $M'(G)$. In der Klammer wird der Normalteiler angegeben, und M' ist die zu M isomorphe Gruppe, die man erhält, wenn man in M den Zeitinversionsoperator durch das Einselement ersetzt.

Die gewöhnliche Darstellungstheorie kann wegen der antiunitären Elemente nicht auf magnetische Gruppen angewandt werden. Wigner /62/ entwickelte ein Konzept, das es erlaubt, aus den Darstellungen des Normalteilers G die sogenannten coreps, die komplexen Darstellungen der magnetischen Gruppe G, zu finden. Für die Gruppe der Darstellungsmatrizen gilt

$$D(R)D(S) = D(RS)$$

$$D(R)D(B) = D(RB)$$

$$D(B)D^*(K) = D(BR)$$

$$D(B)D^*(C) = D(BC)$$

Dabei sind R und S unitäre und B und C antiunitäre Elemente von M. Wegen des Auftretens der konjugiert komplexen Darstellungen, besteht zwischen dieser Gruppe und M im allgemeinen kein Homomorphismus. Die Theorie der coreps und ihre Anwendung ist in dem Artikel von Bradley und Davies /63/ dargestellt.

Die magnetische Raumgruppe der in Abb. 1 dargestellten Struktur ist $D_{4h}^{14}(D_{2h}^{12})$ oder $P4_2/mnm'(Fnnm)$ siehe /64/. Cracknell /65/ berechnete die Anteile der Ramantensoren, die sich unter den coreps der 58 magnetischen Punktgruppen irreduzibel transformieren. Für die Punktgruppe $D_{4h}(D_{2h})$ sind sie in Tabelle 6 angegeben. Die coreps werden im folgenden mit $D\Gamma$ bezeichnet, wobei Γ die Darstellung des Normalteilers ist (hier D_{2h}), aus dem die corep hervorgeht. Die Darstellungen werden nach Wilson, Decius und Cross /52/ und nach Dimmock und Wheeler /64/ benannt.

Tabelle 6. Ramantensoren für die magnetische Gruppe $D_{4h}(D_{2h})$

$\begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & f \\ 0 & 0 & 0 \\ g & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -f \\ 0 & -g & 0 \end{pmatrix}$
DA_g	DB_{1g}	$DB_{2,3g}$
$D\Gamma_1^+$	$D\Gamma_2^+$	$D\Gamma_{4,3}^+$

In der magnetischen Gruppe führen die Darstellungen B_{2g} und B_{3g} zu der zweifach entarteten corep $DB_{2,3g}$, siehe zum Beispiel Koster et al. /66/. Loudon /67/ bestimmte die den coreps zugeordneten Darstellungen des unitären Normalteilers, nach denen sich Spinwellen von verschiedenen Symmetriepunkten und -linien in der BZ transformieren. Die Abb. 22 zeigt das Ergebnis. Ein + in dieser Abbildung bedeutet, daß die zugeordneten coreps miteinander entartet sind. Loudon wählt die Bezeichnung nach /64/. Nach dieser Abbildung transformieren sich die Spinwellen in der Mitte der BZ nach der corep $D\Gamma_{3,4}^+$ und sind damit nach Tabelle 6 ramanaktiv.

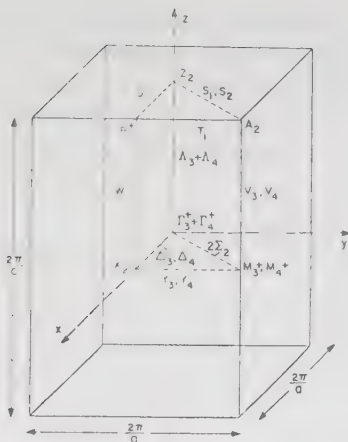


Abb. 22. Irreduzible Darstellungen der Magnonen, siehe Text, nach /67/.

Bei der Stokes'schen Ramanstreuung zweiter Ordnung wird ein Paar von Spinwellen mit nahezu entgegengesetzt gleichem Wellenvektor erzeugt. In einem Antiferromagneten sind vier Paare der Einmagnonenzustände $|\vec{k}\rangle$ und $|\vec{k}'\rangle$ mit verschwindendem Gesamtwellenvektor möglich:

$$|\vec{k}, \downarrow - \vec{k}\rangle \quad |\vec{k}, \uparrow - \vec{k}\rangle \quad |\vec{k}, \downarrow - \vec{k}\rangle \quad |\vec{k}, \uparrow - \vec{k}\rangle \quad (II.1)$$

Produkte der Art $|\vec{p}\rangle |\vec{q}\rangle$ werden als $|\vec{p}, \vec{q}\rangle$ geschrieben. In den ersten beiden Zuständen ändert sich die z -Komponente des Spins nicht, während sie sich in den anderen beiden um $+2$ bzw. -2 ändert. Deshalb erfahren die ersten beiden Zustände in einem in $\vec{z}$ -Richtung gerichteten Magnetfeld keine Verschiebung, während die letzten beiden verschoben werden. Aus (2.15) folgt, daß die Zustände $|\vec{k}\rangle$ und $|\vec{k}'\rangle$ in der Mitte der BZ Anregungen beider Untergitter sind. Am Rande der BZ sind beide Untergitter entkoppelt und die Einmagnonenzustände sind Anregungen des $\vec{l}$ - bzw. $\vec{f}$ -Gitters. Deshalb sind die ersten beiden Zustände in (II.1) am Rande der BZ simultane Anregungen beider Untergitter und die letzten zwei je eines Untergitters.

Da keine Richtung des $\vec{k}$ -Raumes und kein Unterzitter ausgezeichnet ist, haben die Zweimagnonenzustände des Kristalls nach Loudon /67/ folgende Form:

$$\begin{aligned}
 |0, +\rangle &= |\uparrow\vec{k}, \downarrow-\vec{k}\rangle + |\downarrow\vec{k}, \uparrow-\vec{k}\rangle \\
 |0, -\rangle &= |\uparrow\vec{k}, \downarrow-\vec{k}\rangle - |\downarrow\vec{k}, \uparrow-\vec{k}\rangle \\
 |2, +\rangle &= |\uparrow\vec{k}, \uparrow-\vec{k}\rangle + |\downarrow\vec{k}, \downarrow-\vec{k}\rangle \\
 |2, -\rangle &= |\uparrow\vec{k}, \uparrow-\vec{k}\rangle - |\downarrow\vec{k}, \downarrow-\vec{k}\rangle
 \end{aligned}
 \tag{II.1}$$

Die irreduziblen coreps, nach denen sich diese Zustände für kritische $\vec{k}$ -Werte aus der BZ transformieren, sind nach /67/ in Tabelle 7 aufgeführt. Außerdem wurde auch die Parität der Zustände aufgenommen, die sich aus

$$\{I|0\}|\uparrow\vec{k}\rangle = |\uparrow-\vec{k}\rangle$$

ergibt. Eine Null in der Tabelle bedeutet, daß für den entsprechenden $\vec{k}$ -Wert dieser Zweimagnonenzustand nicht existiert. Ein Vergleich der Tabellen 6 und 7 zeigt, zu welchen Streugeometrien die kritischen Punkte in den ramanaktiven Zuständen Beiträge liefern können.

Tabelle 7. Irreduzible coreps der Zweimagnonenzustände für die kritischen Punkte der BZ

Zustand	Γ	X	M	Z	R	A	Parität
$ 2, +\rangle$	DA_g	DA_g	DA_g	DA_g	DA_g	DA_g	+
$ 2, -\rangle$	DB_{1g}	DB_{1g}	DB_{1g}	DB_{1g}	DB_{1g}	DB_{1g}	+
$ 0, +\rangle$	DA_{1g}	0	DB_{1g}	0	$DB_{2,3g}$	0	+
$ 0, -\rangle$	0	$DB_{2,3u}$	0	DA_{1u}	0	DB_{1u}	-

Die Bezeichnung der kritischen Punkte stimmt mit Abb. 3 überein. Nur die Zustände positiver Parität können im Ramaneffekt beobachtet werden.

Die Untersuchungen von Fleury und Loudon /27/ von FeF_2 und MnF_2 in Magnetfeldern ergaben, daß die Zweimagnonenbanden weder aufspalten, noch verschoben werden. Deshalb trägt nur der Zustand $|0, +\rangle$ zum Ramanspektrum bei. Diese Interpretation führte auf

den effektiven Hamiltonoperator (3.1) für die Zweimagnonen-Ramanstreuung. Die von Loudon gruppentheoretisch erhaltenen Auswahlregeln in Tabelle 7 finden ihren Niederschlag im Auftreten der Geometriefaktoren $\phi_i(\vec{k})$ aus (3.13) im fourier-transformierten effektiven Hamiltonoperator.

3.2. Ramanstreuung erster Ordnung an Magnonen

Fleury und Loudon /19/ konnten bei der Untersuchung von MnF_2 die Einmagnonenlinie, die bei etwa 9 cm^{-1} erwartet wird, nicht nachweisen. Loudon schätzte den Streuquerschnitt für diesen Prozeß grob ab und fand einen Wert, der um den Faktor 5 kleiner als im Fall FeF_2 ist. In diesem Kristall kann die Einmagnonenlinie beobachtet werden. Die Intensität ist dabei nur etwa halb so groß wie die der Zweimagnonenbande, die wiederum vergleichbar mit den Zweimagnonenbanden von MnF_2 ist. Nach dieser groben Abschätzung erwartet man die Einmagnonenlinie von MnF_2 um den Faktor 5 bis 10 schwächer als die Zweimagnonenlinien. Fleury verwendete bei den Messungen einen Argonionenlaser mit 50 - 100 mW Ausgangsleistung bei der 488 nm- oder 514,5 nm-Linie.

Bei den hier durchgeführten Messungen standen etwa 650 mW Ausgangsleistung bei 476,5 nm und etwa 150 mW im Streuzentrum zur Verfügung. Außerdem war das Falschlicht der optischen Einrichtung des Kryostaten so gering, daß es sinnvoll erschien, diese Messungen von Fleury zu wiederholen.

Die in den Abbildungen 27 und 28 wiedergegebenen Zweimagnonenbanden wurden mit einer spektralen Spaltbreite von etwa 2 cm^{-1} registriert. Die Maximumsintensität betrug etwa 25 cps für (xy)- und etwa 20 cps für die (xz)-Streugeometrie. Man erwartet deshalb nach der Abschätzung von Loudon die Einmagnonenlinie bei dieser Spaltbreite mit einer Maximumsintensität von 2 bis 5 cps, was durchaus meßbar sein sollte. Tatsächlich konnte jedoch keine Linie gefunden werden, auch bei der Verwendung der 488 nm-Linie nicht, die noch einmal einen Faktor 2 in der Intensität, aber auch höhere Proben Temperaturen bringt. Man kann als Ergebnis dieser Messungen sagen, daß die Abschätzung von Loudon eher zu optimistisch ist und es bei den derzeitigen Nachweismöglichkeiten aussichtslos erscheint, die Einmagnonenlinie von MnF_2 im Raman-effekt nachzuweisen.

3.3. Ramanstreuung zweiter Ordnung an Spinwellen

In I.3. dieser Arbeit wurde dieses Problem theoretisch behandelt. Hier sollen die dort erhaltenen Ergebnisse mit dem Experiment verglichen werden. Bereits der wechselwirkungsfreie Fall in I.3.3.1. vermag einige Aspekte der bei etwa 5K erhaltenen Spektren annähernd zu beschreiben, 3.3.1., wie zum Beispiel Maximumsposition und Gestalt der Bande. Bei der HWB der Banden tritt dagegen eine Diskrepanz auf, und die Temperaturabhängigkeit vermag diese Näherung überhaupt nicht zu erklären. Deshalb wird in 3.3.2. der Streuquerschnitt unter Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen nach Gleichung (3.49) für 1K berechnet und mit den Spalten bei 5K verglichen. Der letzte Punkt dieses Abschnitts, 3.3.3., befaßt sich mit der Temperaturabhängigkeit verschiedener Kenngrößen der Zweimagnonenbanden. In 3.3.3.1. wird zunächst die im Ramanexperiment gemessene Energienormierung mit der nach (2.45) und (2.46) in Verbindung mit (2.35) berechneten theoretischen Renormierung für Temperaturen bis nahe T_N verglichen.

In den letzten Abschnitten wird die Temperaturabhängigkeit von Maximumsintensität, integrierter Intensität, Halbwertsbreite und Gestalt der Banden und die Aussage der Theorie in I.3.3.2. zu diesen Fragen diskutiert.

3.3.1. Zweimagnonen-Ramanstreuung bei 5K

In den Abbildungen 23 , 24 und 25 sind die drei wesentlich verschiedenen theoretischen Spektren gezeigt, wie sie sich im wechselwirkungsfreien Fall aus Gleichung (3.23) für die verschiedenen Streugeometrien ergeben. Dabei wurden folgende Konstanten in cm^{-1} verwendet.

L_1	J_2	L_3	B_A	
0.49	-2.422	-0.065	0.78	(II.3)

Mit diesen Konstanten wird die spektrale Lage der kritischen Punkte der BZ optimal beschrieben. Verwendet man dagegen die

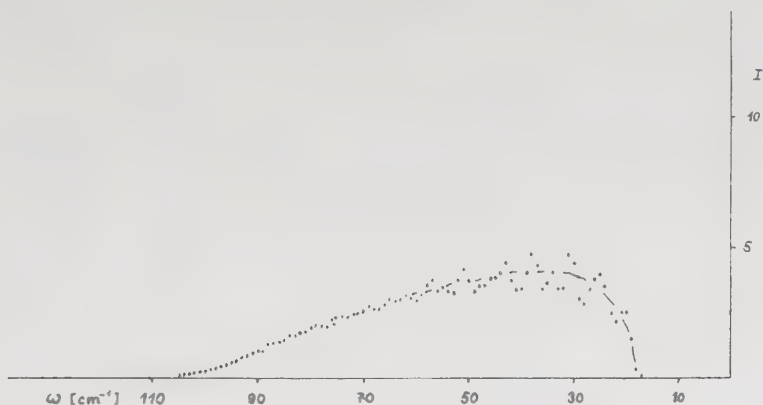


Abb. 23. Theoretisches Zweimagnonenspektrum bei Spurstreuung ohne Wechselwirkung der Spinwellen, nach Faltung für 2 cm^{-1} Spaltbreite.

entsprechenden Werte von Nikotin et al. /13/, so sind die Positionen um etwa 1 cm^{-1} zu niedrigeren Werten verschoben. Der Grund dafür ist, daß Nikotin et al. die Zustandsdichte mit fünf Austauschparametern simulieren. Diese bringen eine optimale Anpassung, doch sind die Werte der Austauschintegrale zwischen Nachbarn fünfter und sechster Ordnung physikalisch sinnlos. Die oben angegebenen Werte liegen nur maximal 2% außerhalb des von Nikotin et al. angegebenen Fehlerbereiches. Die Auswertung der Gleichung (3.24) geschah folgendermaßen:

Wegen des Auftretens der δ -Funktion erhält man gestreute Intensität nur zwischen $2\omega_{\min} = 2\omega(0)$ und $2\omega_{\max} = 2\omega(Z)$. Dieser Spektralbereich wurde in "Streukanäle" einer gewissen Breite eingeteilt. Bei der Integration der Gleichung (3.24) über diese Breite tragen nur einige Punkte der BZ nach Maßgabe des Faktors $\phi_i^2(\vec{k})(E_{\vec{k}}/W_{\vec{k}})^2$ zur Intensität bei. Man erhält dabei eine Treppenkurve über den Streukanälen. Wegen der "körnigen" Struktur der BZ, die für die numerischen Berechnungen zugrunde gelegt wurde, - es wurde eine BZ mit etwa 81 000 gleichmäßig verteilten Punkten verwendet -, treten Schwankungen in benachbarten Streukanälen auf, die bei Vergrößerung der Punktzahl kleiner werden würden. Bei einer BZ mit dicht liegenden Punkten würde man eine

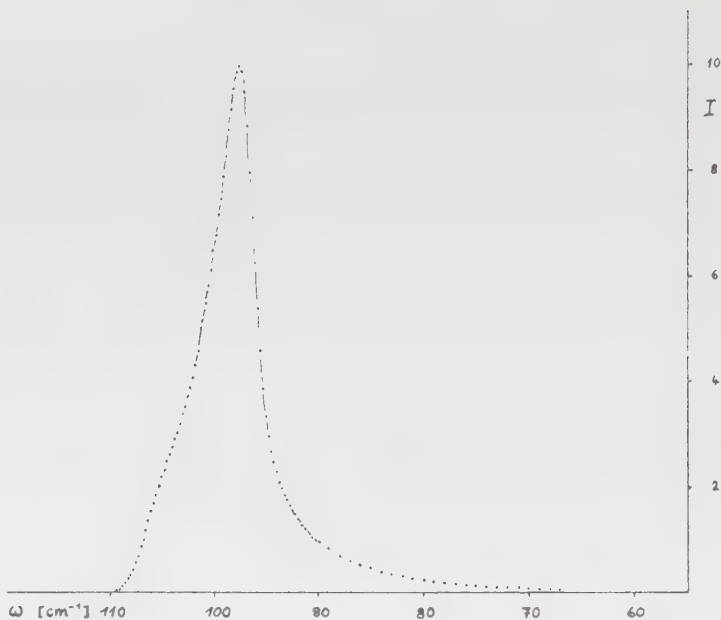


Abb. 24. Theoretisches Zweimagnonenspektrum in (xy)-Streu-
geometrie ohne Wechselwirkung der Spinwellen, $T = 0\text{K}$,
nach Faltung für 2 cm^{-1} Spaltbreite.

glatte Kurve erhalten, deren Struktur allein von der Dispersionskurve herrühren würde. Die so berechneten Banden wären jene, die man bei unendlich kleinem Spalt beobachten würde. Da der Spalt dagegen eine endliche Breite hat, die im allgemeinen vergleichbar mit der HWB der Bande ist, ist die beobachtete Bande wesentlich vom Spalt beeinflusst. Um realistische Vergleiche zwischen beobachteten und theoretischen Spektren ziehen zu können, wurden die theoretischen Spektren mit einer Spaltfunktion gefaltet. Das Spaltprofil wurde dazu in einfachster Näherung durch ein Dreieck angenähert. Die Faltung hatte den erwünschten Nebeneffekt, daß die oben erwähnten Schwankungen geglättet wurden. Diesen Effekt erzielt man auch bei Berücksichtigung der Dämpfung.

Bei Spurstreuung erhält man genau genommen zwei Spektren, je nachdem ob einfallendes und gestreutes Licht in der isotropen Ebene oder parallel zur optischen Achse polarisiert ist. Die

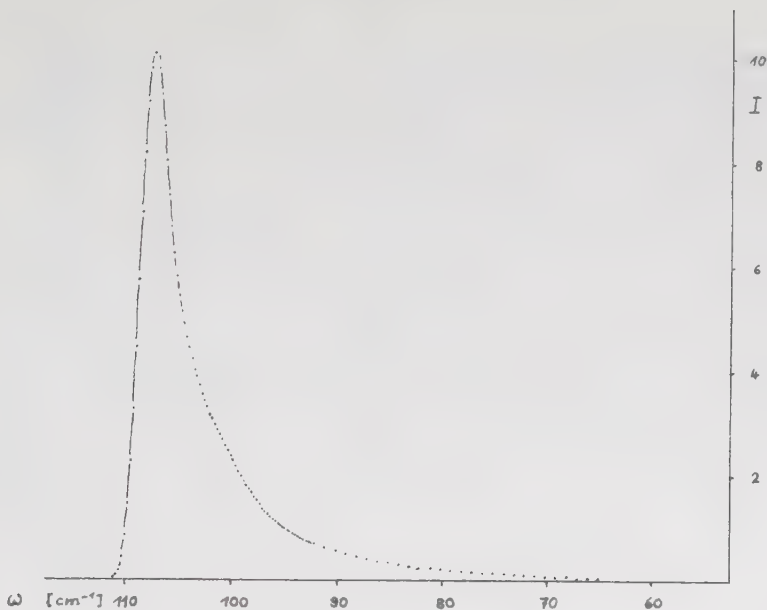


Abb. 25. Theoretisches Zweimagnonenspektrum in (xz)-Streu-
geometrie ohne Wechselwirkung der Spinwellen, $T = 0K$,
nach Faltung für 2 cm^{-1} Spaltbreite .

beiden Spektren unterscheiden sich nach (3.10) jedoch nur in der Intensität, ausgedrückt durch die Konstanten B_1 und B_2 , während das Profil der Bande, bestimmt durch den Geometriefaktor $\phi_1^2(k)$, für alle drei Streugeometrien (xx), (yy) und (zz) gleich ist.

Nach der Berechnung der theoretischen Spektren in den Streugeometrien (xy) und (xz) bei Wechselwirkung der Spinwellen ergibt sich, daß diese außer zu einer Verbreiterung der Bande zu keiner wesentlichen Änderung gegenüber dem wechselwirkungsfreien Fall führt. Man kann deshalb, ohne den theoretischen Ausdruck für die Spurstreuung bei Wechselwirkung der Spinwellen zu entwickeln und auszuwerten, annehmen, daß ähnliches auch für diesen Fall gilt. Man kann deshalb das theoretische Spektrum für den wechselwirkungsfreien Fall als Ausgangspunkt der Diskussion betrachten.

Das theoretische Spektrum in Abb. 23 ist durch eine gestaltlose, breite Bande gekennzeichnet, die bei etwa 35 cm^{-1} ein breites Maximum besitzt. Man erwartet also in den entsprechenden Streugeometrien Spektren mit einem erhöhten Untergrund auf der Stokes'schen Seite der Rayleighlinie.

In Abb. 26 ist als Beispiel für die Spurstreuung das (yy)-Spektrum bei etwa 10K wiedergegeben und um einen Anhalt für die Intensität zu geben mit der Zweimagnonenstreuung in den anderen Streugeometrien verglichen. Wie man sieht, ist in (yy) praktisch keine Zweimagnonenstreuung zu beobachten. Die Andeutung einer Bande bei 100 cm^{-1} ist der geringen Fehlorientierung zuzuschreiben. Für (zz) erhält man ein ähnliches Ergebnis, so daß man aus diesen Experimenten auf $B_1 \approx 0$ und $B_2 \approx 0$ schließen kann. Dieses experimentelle Ergebnis ist der Grund, weshalb die theoretische Berechnung des Streuquerschnitts bei Spinwellenwechselwirkung für diese Streugeometrien nicht durchgeführt wurde.

Die theoretischen Spektren in den anderen Streugeometrien unterscheiden sich wesentlich von der Spurstreuung. In beiden tritt ein scharfes Maximum auf, in (xy) bei 97.5 cm^{-1} und in (xz) bei 107.5 cm^{-1} . Für Energien kleiner als etwa 65 cm^{-1} ergibt sich praktisch keine Intensität mehr. Die entsprechenden experimentellen Spektren, mit kleinen Spalten registriert, zeigen die Abbildungen 27 und 28. Die Maxima liegen etwa bei 97 cm^{-1} bzw. 106.5 cm^{-1} , also etwas niedriger als die gerechneten Werte. Die Differenzen liegen zwar innerhalb der Meßfehler, aber es wird sich zeigen, daß die Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen die Banden geringfügig zu niedrigeren Energien verschiebt.

Die Halbwertsbreiten der experimentellen Banden betragen 4 cm^{-1} für die DB_{1g} -Linie, bei 2 cm^{-1} Spaltbreite, und 9 cm^{-1} für die $DB_{2,3g}$ -Linie, bei 2.5 cm^{-1} Spaltbreite. Die berechneten und mit den entsprechenden Spaltfunktionen gefalteten Spektren haben solche von 5 cm^{-1} bzw. 4 cm^{-1} . Während man also für die (xy)-Linie gute Übereinstimmung erhält, ist die theoretische (xz)-Linie um mehr als den Faktor 2 zu schmal. In 3.3.2. wird gezeigt, daß die Wechselwirkung zu einer Verbreiterung dieser Bande und zu einer geringfügigen Abnahme der HWB der anderen Bande führt.

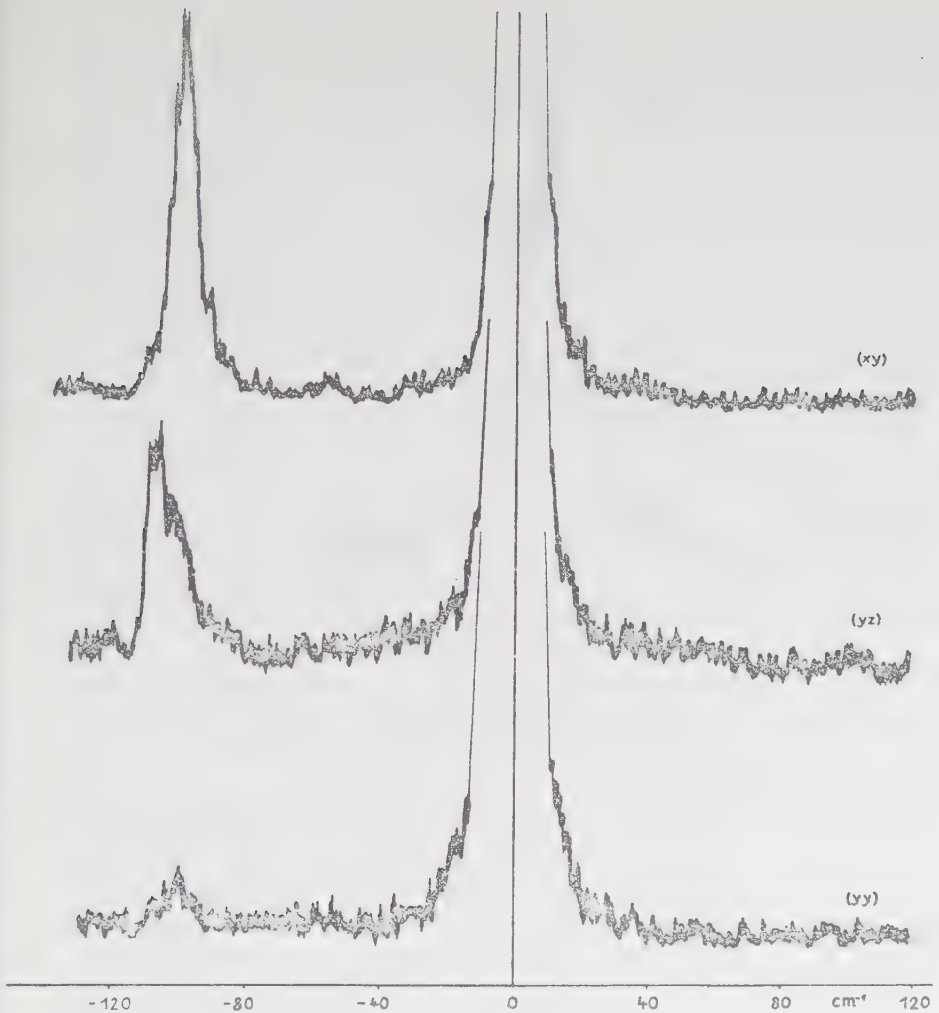


Abb. 26. Ramanstreuung an MnF_2 bei 5K in den drei wesentlich verschiedenen Streugeometrien zwischen 120 und -120 cm^{-1} . Laser: 476.5 nm , etwa 150 mW in der Probe. Spalt: 4 cm^{-1} . Empfindlichkeiten von oben: 2^8 , 2^7 , 2^7 cps . Wegen der geringen Fehlorientierung schlägt in Spurstreuung die $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande durch. Oben: DB_{1g} -Zweimagnonenbande, Mitte: $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande.

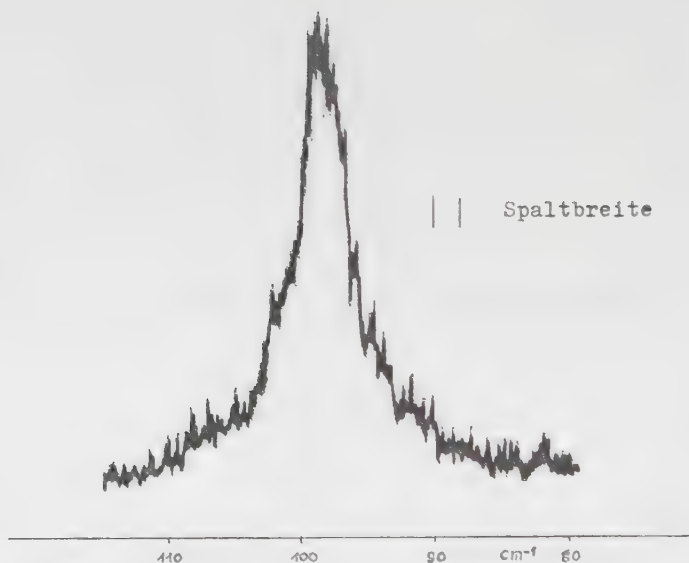


Abb. 27 DB_{1g} -Zweimagnonenbande in (xy)-Streugeometrie bei 5K.
 Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe
 Spalt: 2 cm^{-1} , etwa 25 cps Maximumsintensität.

Der Vergleich der Abbildungen 24 , 25 mit 27 , 28 zeigt, daß die Rechnung die Profile der beobachteten Bande qualitativ richtig wiedergibt. Diese lassen sich an Hand der Zustandsdichte in Abb. 3 zwanglos erklären. Im folgenden soll dies geschehen, weil es zeigt, welche Information das Raman-Spektrum der Zweimagnonenstreuung liefert.

1. Die DB_{1g} -Bande der Streugeometrie (xy), Abb. 27.

Nach (3.10) bestimmt in dieser Streugeometrie der Geometriefaktor $\phi_2^2(\vec{k})$ aus (3.13) die wesentlichen Eigenschaften der Bande. Die Maximumsposition liegt bei 98 cm^{-1} und stimmt gut mit der doppelten Energie des M-Punktes überein.

Diese Bande ist durch eine deutliche Struktur in der höherenergetischen Flanke gekennzeichnet. Es scheinen zwei Linien bei

102 cm^{-1} und 107 cm^{-1} überlagert zu sein. Auch das theoretische Spektrum in Abb. 24 zeigt bei genauerer Betrachtung zwei Schultern bei ähnlichen Wellenzahlen. Sie haben ihre Ursache in der Struktur der Zustandsdichte.

Setzt man einmal die Vorfaktoren des Geometriefaktors in der Streuformel für $T=0\text{K}$ gleich 1, was in der Nähe der Oberfläche der BZ eine gute Näherung ist, dann bestimmt $\phi_2^2(\vec{k})$ allein das Profil der Bande.

Vom Punkt M ausgehend gibt es zwei wesentlich verschiedene Möglichkeiten zu Punkten mit höherer Energie zu gelangen, nämlich in der isotropen Ebene auf der Oberfläche zum Punkt X und zum anderen parallel zur vierzähligen Achse zum Punkt A. Zwischen M und X ändert sich die Dispersionskurve nur wenig, von 48.5 cm^{-1} auf 49.0 cm^{-1} . Zwischen M und A ändert sich die Spinwellenenergie zwischen 48.5 cm^{-1} und 53.2 cm^{-1} . Da die Zustandsdichte die Zahl der Punkte im entsprechenden Energieintervall an gibt, ist sie zwischen 48.5 und 49.0 cm^{-1} im wesentlichen durch die Punkte M und X bedingt, abgesehen von Punkten aus dem Inneren der BZ mit großen k_z -Werten, die wenig Einfluß auf das Folgende haben.

Der Geometriefaktor $\phi_2^2(\vec{k})$ unterdrückt den Beitrag von X und A und ihrer Umgebungen und von Punkten mit großen k_z - oder kleinen k_x - oder k_y -Werten. Die Folge davon ist, daß das Linienprofil in dem engen Spektralbereich von 97 cm^{-1} bis 98 cm^{-1} , entsprechend dem Doppelten von ω_M und ω_X , stark abfällt auf einen Intensitätswert, der durch den Beitrag der Punkte bei M in Richtung A gegeben ist. In dieser Richtung erreicht der Geometriefaktor erst bei solchen Punkten einen kleinen Wert, die eine größere Energiedifferenz gegenüber M haben. Man erhält dadurch die Schulter bei 102 cm^{-1} , die keine Folge eines Maximums in der Zustandsdichte ist, sondern eine Folge der kleinen Energiedifferenz zwischen M und X, - diese hängt mit dem kleinen Wert von L_3 zusammen -, und der Unterdrückung von X. Nach diesen Interpretationen kommt also nicht der Schulter selbst, sondern dem Knick der steilen Flanke zwischen dieser Schulter und dem Maximum der Bande eine Bedeutung zu. Dieser Knick liegt bei 99 cm^{-1} , also dort, wo man ihn nach dieser Erklärung etwa erwartet.

Die zweite Schulter bei 107 cm^{-1} hat dagegen einen realen Hintergrund im Maximum der Zustandsdichte bei A und R. Zwar wird der Beitrag dieser Punkte selbst unterdrückt, - in A und Umgebung näherungsweise proportional zu $\cos^2 \varphi$ und bei R proportional zu $\cos^4 \varphi$, wobei φ bei Annäherung an die kritischen Punkte gegen $\pi/2$ geht -, wegen des starken Maximums der Zustandsdichte erhält man aber dennoch einen wesentlichen Beitrag zum Spektrum. Die Wellenzahl dieser Schulter stimmt gut mit dem Wert überein, den man aus dem Maximum der Zustandsdichte berechnet. Da der Punkt M der energieniedrigste kritische Punkt, abgesehen von Γ , ist, erwartet man auf der niederenergetischen Flanke der Bande keine Struktur, in Übereinstimmung mit der Beobachtung.

2. Die $DB_{2,3g}$ -Bande in der (xz)-Streugeometrie, Abb. 28.

In dieser und in den äquivalenten Streugeometrien bestimmen die Geometriefaktoren $\phi_4^2(\vec{k})$ und $\phi_3^2(\vec{k})$ die Eigenschaften der Bande. Sie gewichten die Punkte (101) bzw. (011) der BZ, die zum selben $\vec{k}$ -Stern gehören und in Abb. 3 mit R bezeichnet sind.

Die Maximumsposition liegt bei 107 cm^{-1} und stimmt gut mit der doppelten Energie des R-Punktes überein. Die Beiträge der anderen kritischen Punkte der BZ werden ähnlich wie im Fall der DB_{1g} -Bande unterdrückt.

Eine ähnliche Diskussion wie oben führt zu der Erwartung, eine Schulter bei etwa 104 cm^{-1} und eine bei etwa 97 cm^{-1} zu beobachten. Die erste entspricht jener bei 102 cm^{-1} und die zweite der bei 107 cm^{-1} im Fall der DB_{1g} -Bande. Allerdings ist die Situation bei der 104 cm^{-1} -Schulter etwas anders. Die 102 cm^{-1} -Schulter liegt auf der höherenergetischen Seite des Maximums der DB_{1g} -Bande. Punkte aus dem Innern der BZ können deshalb nur dann beitragen, wenn sie entsprechend große k_z -Werte haben. Der Geometriefaktor $\phi_2^2(\vec{k})$ unterdrückt sie dann, so daß man einen steilen Abfall zwischen Maximum und Schulter erhält. Die 104 cm^{-1} -Schulter liegt dagegen niederenergetischer als das Maximum der $DB_{2,3g}$ -Bande. Somit können auch Punkte aus dem Innern der BZ in unmittelbarer Umgebung von R beitragen, ohne vom Geometriefaktor unterdrückt zu werden. Man erwartet deshalb einen weniger scharfen Abfall wie in der anderen Streugeometrie.

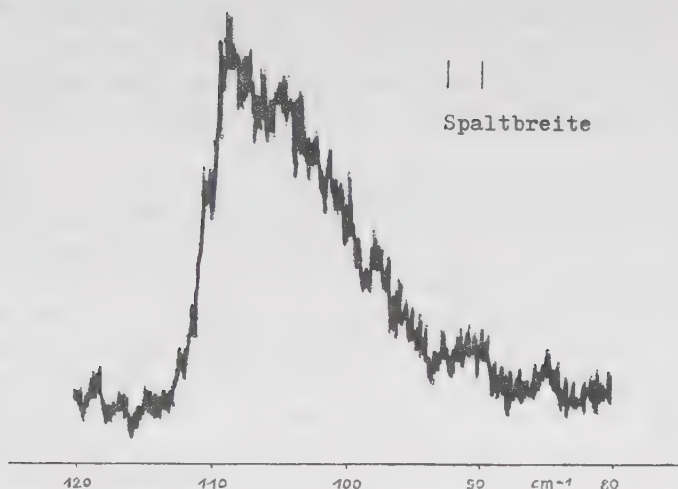


Abb. 28. $DB_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande in (xz)-Streuengeometrie bei 5K.
 Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe
 Spalt: 2.5 cm^{-1} , etwa 20 cps Maximumsintensität.

Experimentell lassen sich diese Erwartungen nur schwer nachprüfen. Das liegt daran, daß diese Bande um mehr als einen Faktor 2 intensitätsschwächer als die andere Zweimagnonenbande ist. Aus diesem Grunde mußte der Spalt auf etwa 2.5 cm^{-1} geöffnet werden, um das Spektrum in Abb. 28 zu erhalten. Trotzdem ist die Bande wegen der größeren Empfindlichkeit verrauschter als die in Abb. 27. Dennoch konnten die folgenden Ergebnisse reproduzierbar erhalten werden.

Der Anstieg beginnt etwa bei 90 cm^{-1} , und bei 100 cm^{-1} beobachtet man eine Schulter, die dem M- und X-Maximum in der Zustandsdichte zugeordnet ist. Etwa 2 cm^{-1} unterhalb des Maximums wird eine Einsattelung festgestellt, die denselben Grund wie der Knick bei 99 cm^{-1} in der anderen Streugeometrie hat.

Ein wesentliches Kennzeichen dieser Bande ist der äußerst scharfe Abfall bei etwa 110 cm^{-1} . Dies ist eine direkte Folge des scharfen Abfalls der Zustandsdichte zwischen K und Z in Abb. 3, verstärkt durch die Unterdrückung des Punktes Z durch den Geometriefaktor.

Das theoretische Spektrum in Abb. 25 beschreibt einige Aspekte, wie den scharfen Abfall bei 110 cm^{-1} , die Schulter bei 100 cm^{-1} und auch andeutungsweise eine Schulter bei etwa 105 cm^{-1} , qualitativ richtig. In der HWB tritt dagegen eine wesentlich größere Diskrepanz als in der anderen Streugeometrie auf.

Die energetische Anordnung der Punkte M und X bzw. A und R relativ zueinander, und damit der Charakter der Singularitäten, siehe z.B. Loudon /67/, ist eine direkte Folge des Vorzeichens von L_3 . Während die Messungen von Okazaki et al. /12/ nur eine obere Grenze für L_3 festlegen konnten, folgt aus den Messungen von Nikotin et al. /13/ der antiferromagnetische Charakter von L_3 . Das negative Vorzeichen führte zu der obigen Interpretation der Schultern bei 102 cm^{-1} in der (xy)- und 105 cm^{-1} in der (xz)-Streugeometrie. Ein positives Vorzeichen führt dazu, daß M und X bzw. A und R ihre energetische Reihenfolge und den Charakter der Singularität vertauschen. Nach der obigen Diskussion erwartet man dann eine Schulter im steilen Abfall der $DB_{2,3g}$ -Bande und eine weitere in der niederenergetischen Flanke der DB_{1g} -Bande und außerdem verschobene Maximumpositionen. Dieser Abschnitt zeigte, welche Menge von Information man aus der ramanspektroskopischen Untersuchung der Zweimagnonenstreuung erhalten kann, wenn man zumindest näherungsweise einen Heisenberg'schen Spinhamiltonoperator ansetzen kann.

3.3.2. Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, daß die Näherung des Magnongases einige experimentelle Ergebnisse befriedigend zu erklären vermag. Eine große Abweichung tritt bei der HWB besonders in der (xz)-Streugeometrie auf.

Als Erste wiesen Elliott und Thorpe /29/ darauf hin, daß die Ursache für diese in allen ramanspektroskopisch untersuchten Antiferromagneten festgestellte Diskrepanz in der Wechselwirkung der Spinwellen zu suchen ist. Die starke Wechselwirkung ist eine Folge der Eigenart der Anregung der Streuung. Nach der Theorie von Tanabe et al. /25/ führt die Austauschwechselwirkung zwischen

angeregten Zuständen der magnetischen Ionen zu elektrisch dipolaktiven Übergängen. Da die Reichweite der Austauschwechselwirkung nur klein ist, werden zwei Ionen in enger räumlicher Nachbarschaft angeregt, so daß sich die Spinwellen gegenseitig stark beeinflussen können. Das führt zu einer mehr oder weniger starken Modifikation der Spektren.

Zur numerischen Berechnung wurde von der Gleichung (3.49) ausgegangen. In den Imaginärteil der Green'schen Funktion $G_{\tilde{P},\tilde{P}}(\omega)$ gehen auch die Realteile der Funktionen $\hat{L}_j^{01}(\omega)$, $\hat{L}_j^{02}(\omega)$ und $\hat{L}_j^{20}(\omega)$ ein. Die Realteile sind im wesentlichen die Hauptwerte der Integrale (bzw. Summen) über die BZ. Sie hängen für eine Ramanverschiebung ω von allen Punkten der BZ ab. Da keine andere Möglichkeit der Auswertung gefunden wurde, mußten die Spektren punktweise für vorgegebene Ramanverschiebungen berechnet werden. Dabei konnte explizit die Berechtigung der Näherung, die zu (3.50) führte, bestätigt werden. In den Abbildungen 29 und 30 ist das Ergebnis dieser Rechnungen für $T=1K$ nach Faltung mit der Spaltfunktion mit den beobachteten Spektren bei 5K verglichen. Für die DB_{1g} -Bande ist diese Faltung notwendig, weil das theoretische Spektrum selbst bei Berücksichtigung der Wechselwirkung noch sehr schmal ist, so daß man im Experiment zumindest teilweise das Spaltprofil registriert.

Die Maxima der Banden ergeben sich nun bei 96.5 cm^{-1} , (wechselwirkungsfrei bei 97.5 cm^{-1}), in der (xy)- und bei 106.5 cm^{-1} (107.5 cm^{-1}) in der (xz)-Streugeometrie, in guter Übereinstimmung mit dem Experiment. Nach der Faltung findet man für einen 2 cm^{-1} -Spalt eine theoretische HWB von 4 cm^{-1} in (xy), ebenfalls in guter Übereinstimmung mit der Beobachtung. Für das Spektrum in der (xz)-Streugeometrie führt die Wechselwirkung zu einer wesentlichen Zunahme der HWB, 7 cm^{-1} bei 2 cm^{-1} Spaltbreite, aber die beobachteten 9 cm^{-1} werden nicht erreicht. Allerdings ist diese HWB wegen des äußerst scharfen Abfalls stark durch die Apparatefunktion bedingt, die durch die Faltungsfunktion nur angenähert wird, so daß die Differenz auf etwa 1 cm^{-1} geschätzt wird. Die Ursache für diese Diskrepanz, die in der anderen Streugeometrie nur deshalb nicht auftrat, weil dort HWB der Bande und Spaltbreite gleiche Größenordnung haben, liegt wohl in der vollständigen Vernachlässigung der Dämpfung. Darauf wird weiter unten noch einmal eingegangen.

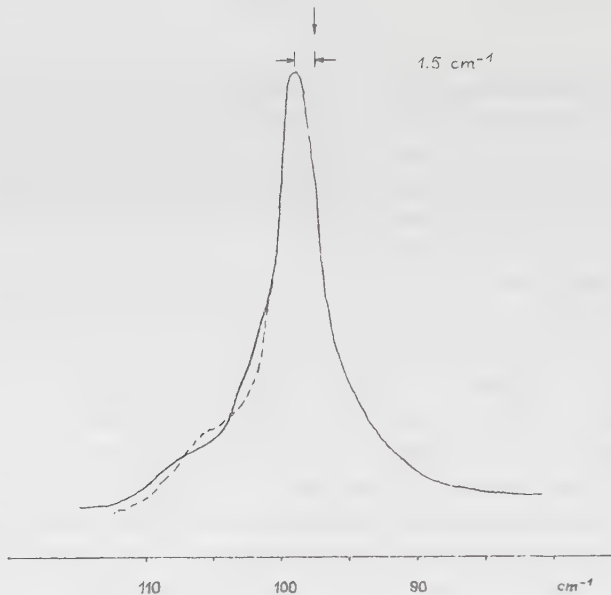


Abb. 29. DB_{1g} -Zweimagnonenbande aus Abb. 27 (ausgezogen), verglichen mit dem theoretischen Spektrum bei Berücksichtigung der Wechselwirkung (gestrichelt). Spalt: 2 cm^{-1} , $T = 5\text{K}$.

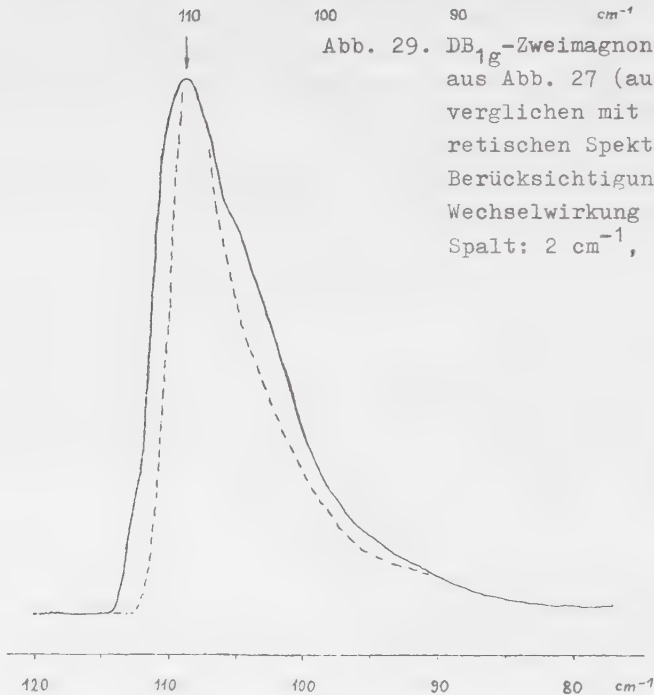


Abb. 30. $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande bei 5K, experimentell (ausgezogen) und theoretisch bei Berücksichtigung der Spinwellen-Wechselwirkung (gestrichelt). Spalt: 2.5 cm^{-1} .

Die gerechneten Maximumpositionen sind gekennzeichnet, Pfeil.

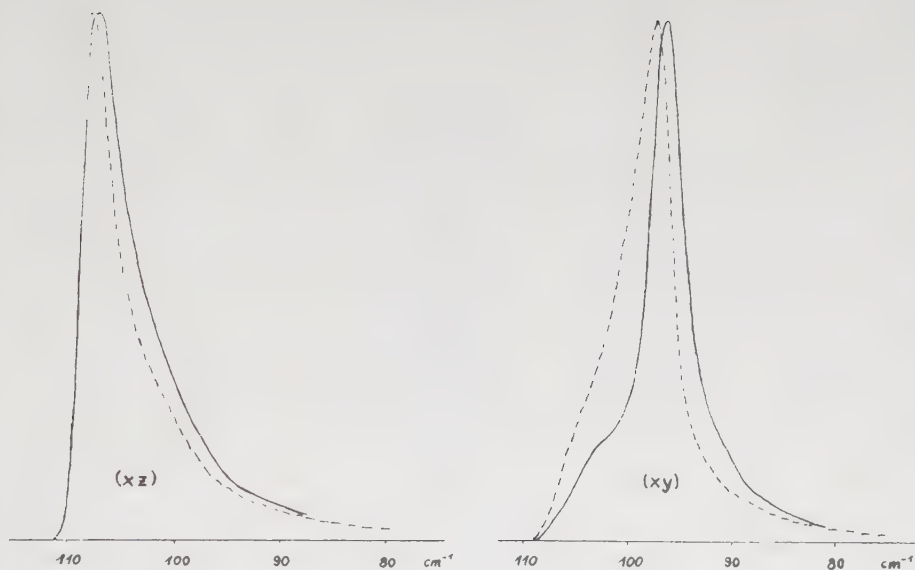


Abb. 31. Vergleich der theoretischen Spektren für Zweimagnonenstreuung mit (ausgezogen) und ohne (gestrichelt) Wechselwirkung der Spinwellen für $T = 0\text{K}$ und Faltung für 2 cm^{-1} Spaltbreite.

In der Abb. 31 sind die theoretischen Spektren ohne und mit Wechselwirkung der Spinwellen für einen 2 cm^{-1} Spalt miteinander verglichen. Die Berücksichtigung der Wechselwirkung führt zu folgenden Modifikationen:

Beide Banden werden geringfügig zu niedrigeren Energien verschoben. Die höherenergetische Flanke der DB_{1g} -Bande, die ohne Wechselwirkung im Vergleich zur Beobachtung zu intensiv ist, wird geschwächt, mit der Folge, daß die Schulter bei 102 cm^{-1} deutlicher und die HWB geringfügig kleiner wird. Beides führt zur besseren Übereinstimmung mit dem experimentellen Spektrum in Abb. 27.

In der anderen Streugeometrie führt die Wechselwirkung zu einer deutlicher Verbreiterung der Bande, ohne die Struktur wesentlich zu ändern.

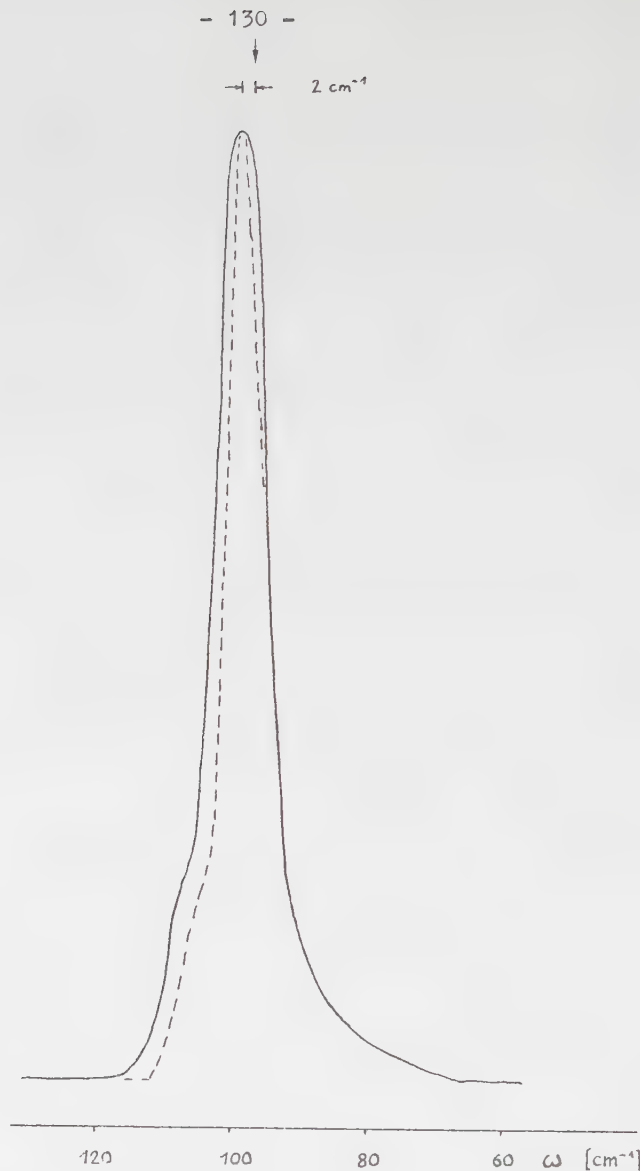


Abb. 32. DB_{1g} -Zweimagnonenbande in (xy)-Streugeometrie bei 20K.
 Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.
 Spalt: 4 cm^{-1} , Maximumsintensität etwa 120 cps.
 Ausgezogene Kurve: Experiment, gestrichelt: Theorie
 mit Wechselwirkung und ohne Dämpfung der Spinwellen.
 Die gerechnete Maximumsposition ist gekennzeichnet
 (Pfeil).

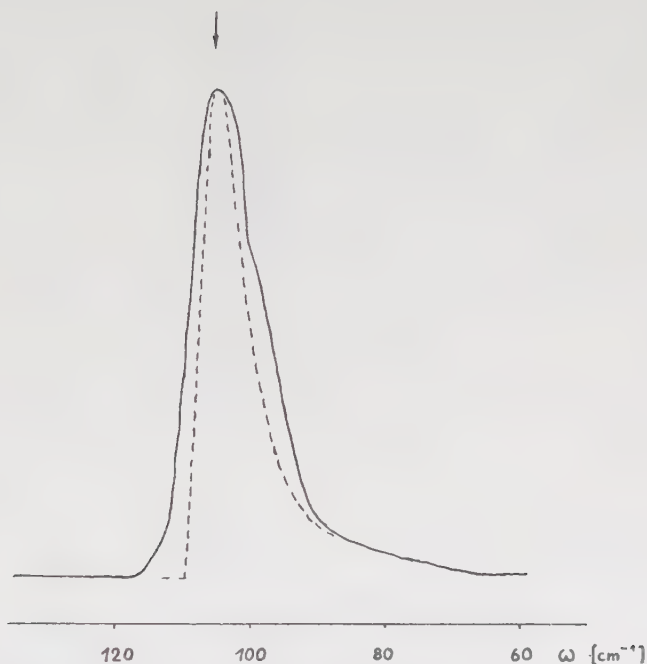


Abb. 33. $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande in (xz)-Streuigeometrie bei 20K.
Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.
Spalt: 4 cm^{-1} , Maximumsintensität etwa 60 cps.
Ausgezogene Kurve: Experiment, gestrichelt: Theorie
mit Wechselwirkung und ohne Dämpfung der Spinwellen.
Gerechnete und beobachtete Maximumsposition fallen
zusammen.

In den Abbildungen 32 und 33 sind die experimentellen Spektren bei 20K mit den theoretischen bei Berücksichtigung der Wechselwirkung verglichen. Die Position des Maximums wird in der (xz)-Streuigeometrie gut und für die (xy)-Bande befriedigend beschrieben. Zum besseren Vergleich wurde in Abb. 32 die berechnete Bande bei der experimentellen Position eingezeichnet. Die theoretische Position ist durch einen Pfeil gekennzeichnet. Man erkennt, daß die im Teil I dieser Arbeit dargestellte Theorie

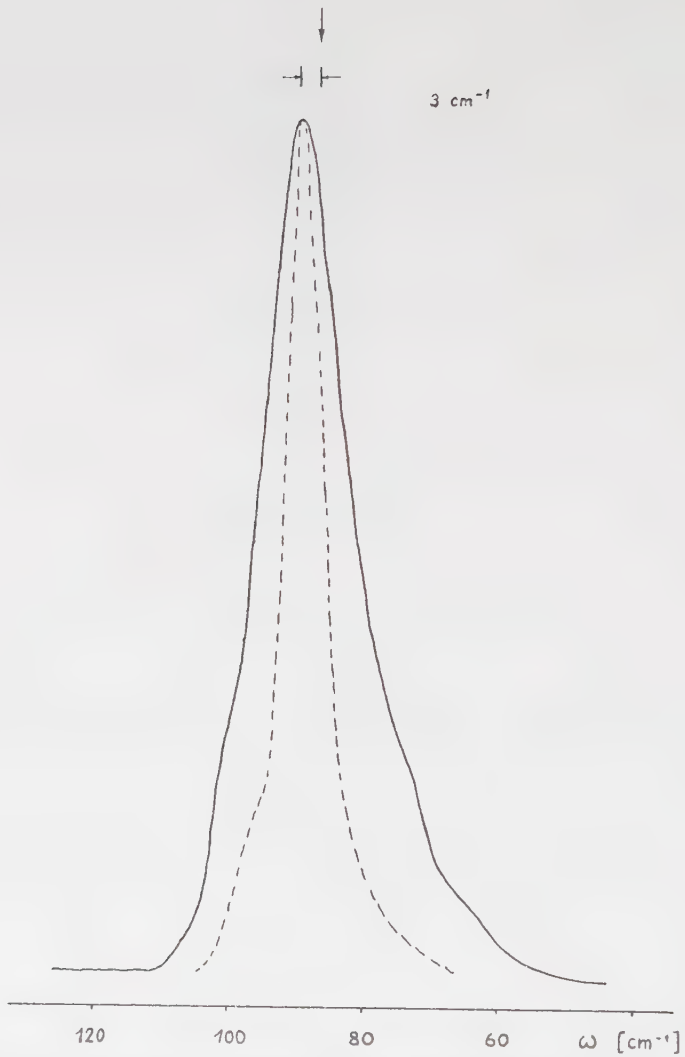


Abb. 34. DB_{1g}-Zweimagnonenbande in (xy)-Streugeometrie bei 40K.
Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 32.
Maximumsintensität etwa 120 cps.
Ausgezogene und gestrichelte Kurve wie in Abb. 32.

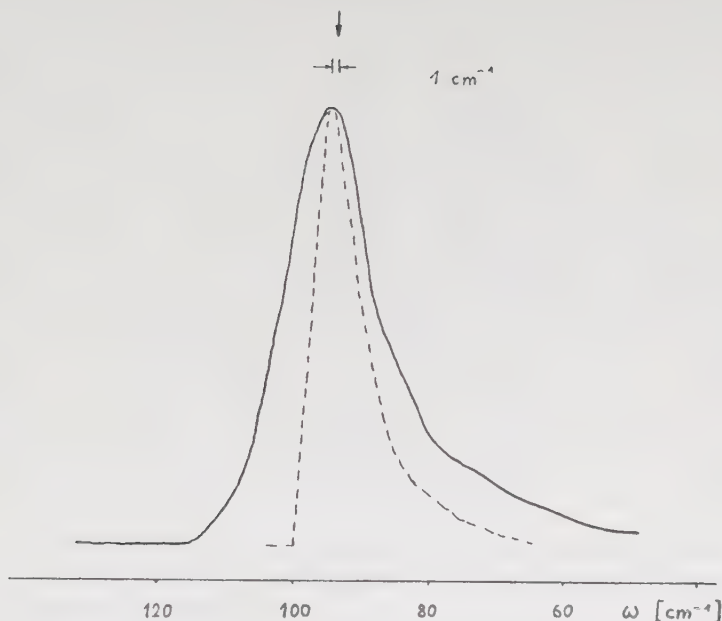


Abb. 35. $DB_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande in (xz)-Streuengeometrie bei 40K.
Experimentellen Bedingungen wie in Abb. 33.
Maximumsintensität etwa 45 cps.
Ausgezogene und gestrichelte Kurve wie in Abb. 33.

der Ramanstreuung an Magnonen die experimentellen Ergebnisse bis zu dieser Temperatur befriedigend zu erklären vermag. Die Struktur in der niederenergetischen Flanke der (xz)-Bande, die auch im experimentellen Spektrum bei 5K auftrat, ist wohl auf die geringe Fehlorientierung des Kristalls zurückzuführen.

In den Abbildungen 34 und 35 sind die entsprechenden Spektren bei 40K wiedergegeben. Die Intensität der theoretischen Spektren ist auf das jeweilige beobachtete Maximum normiert. Es fällt sofort die große Diskrepanz zwischen experimentellen und theoretischen Halbwertsbreiten auf. Die theoretischen Halbwertsbreiten haben sich gegenüber dem Wert bei 5K praktisch nicht geändert, während die experimentellen von 6 auf 17 cm^{-1} für die (xy)- und von 10 auf 18 cm^{-1} für die (xz)-Bande zugenommen haben.

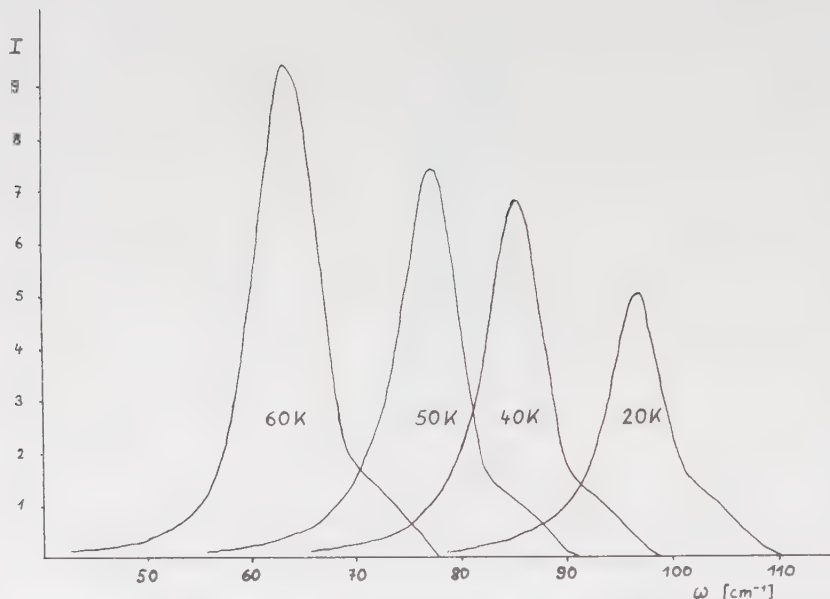


Abb. 36. Theoretischer Temperaturgang der Zweimagnonenstreuung in (xy)-Streugeometrie bei Wechselwirkung der Spinwellen. Spalt: 4 cm^{-1} .

Vergleicht man die Abbildungen 29, 32 und 34, so sieht man, daß die theoretische Maximumsposition der (xy)-Bande stärker als die experimentelle abnimmt, im Gegensatz zur anderen Streugeometrie, siehe auch Abb. 44 und 45. Die Differenz ist etwas größer als der Meßfehler.

Schwerwiegender allerdings als diese Differenz ist die große Diskrepanz in den Halbwertsbreiten. Hier versagt auch die Theorie wechselwirkender Spinwellen. Die Situation wird noch deutlicher, wenn man den Temperaturgang der theoretischen Spektren betrachtet, Abb. 36 und 37. Die Maximumsintensität ist jeweils auf den Wert bei 1K normiert. Der Anisotropiefaktor η wurde in diesen Rechnungen gleich 2 gesetzt, siehe II.3.3.4. Man sieht, daß die Maximumsintensität mit steigender Temperatur zunimmt und die Halbwertsbreite etwa konstant bleibt, im krassen Gegensatz zur Beobachtung. In I.3.3.1. wurde für den Fall freier Spinwellen eine Intensitätszunahme zwischen 0 und 40K von etwa 1.7 abgeschätzt.

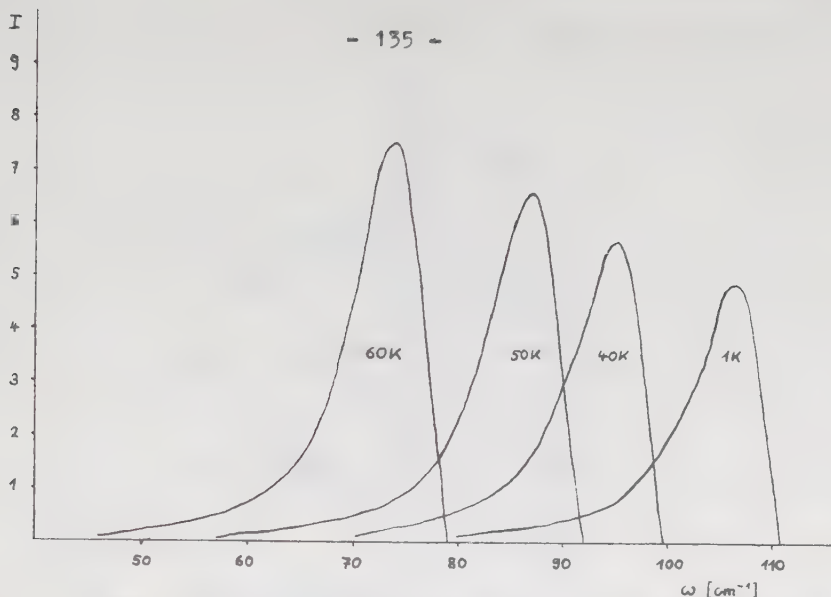


Abb. 37. Theoretischer Temperaturgang der Zweimagnonenstreuung in (xz)-Streuengeometrie bei Wechselwirkung der Spinwellen. Spalt: 4 cm $^{-1}$.

Bei Wechselwirkung der Spinwellen, die zu dem Intensitätsfaktor $\langle \alpha \rangle^2$ führt, beträgt die Zunahme nur mehr etwa 20%. Der Intensitätsfaktor hat den gewünschten Effekt, aber die Gegenläufigkeit zum Stokes- und Bosefaktor ist nicht groß genug.

Dasselbe Ergebnis fanden Davies et al. /34/ bei der Untersuchung von KNiF_3 und Natoli und Ranninger /41/ für FeF_2 , NiF_2 und CoF_2 . Die Zunahme der HWB und die Abnahme der Maximumsintensität der Zweimagnonenbanden bei steigender Temperatur ist eine Folge der zunehmenden Dämpfung der Spinwellen. Hierauf wird in II.3.3.4. eingegangen.

3.3.3. Temperaturabhängigkeit der Zweimagnonenstreuung

Bei Temperaturerhöhung über etwa 20K, etwa $(1/3)T_N$, beginnen sich die Zweimagnonenbanden wesentlich zu ändern. Die Abbildungen 38 und 39 zeigen den experimentellen Temperaturgang bis nahe T_N . Maximumsenergie und -intensität nehmen ab und die HWB und integrierte Intensität zu. Wie oben erwähnt, kann die dämpfungsfreie Theorie die Beobachtung nicht erklären.

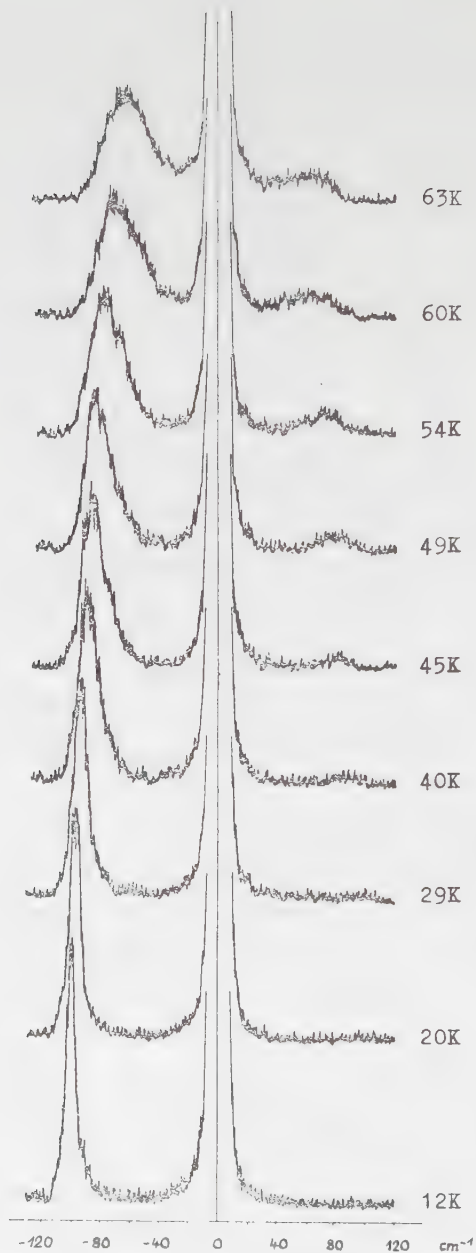


Abb. 38. DB_{1g} -Zweimagnonenbande in (xy)-Streuigeometrie bei verschiedenen Temperaturen.

Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.

Spalt: 4 cm^{-1} .

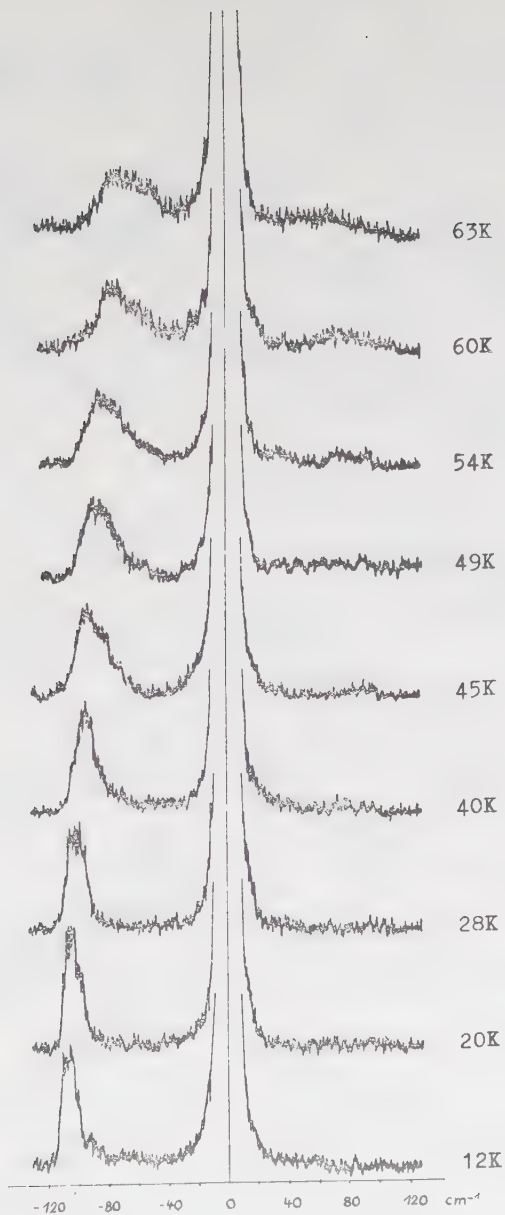


Abb. 39. $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande in (xz)-Streuengeometrie bei verschiedenen Temperaturen.

Laser: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.

Spalt: 4 cm^{-1} .

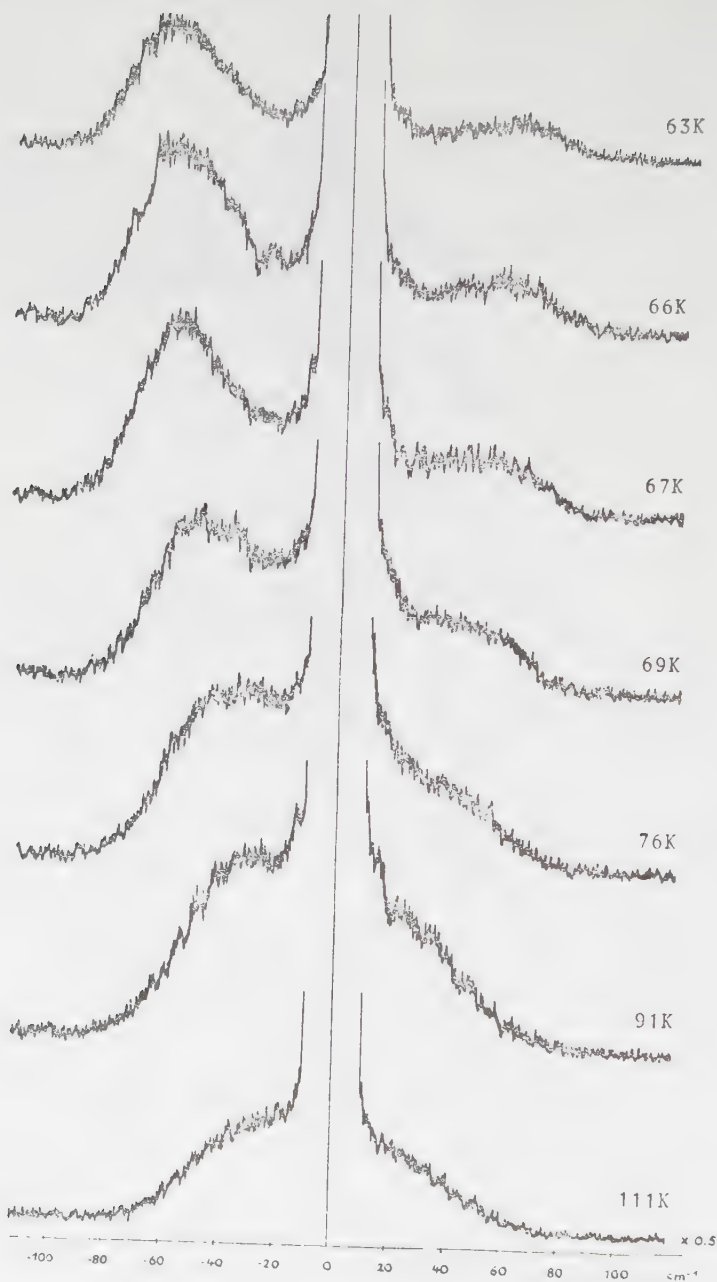


Abb. 40. Zweimagnonen-Ramanstreuung in (xy)-Streu geometrie bei Temperaturen um und über T_N .

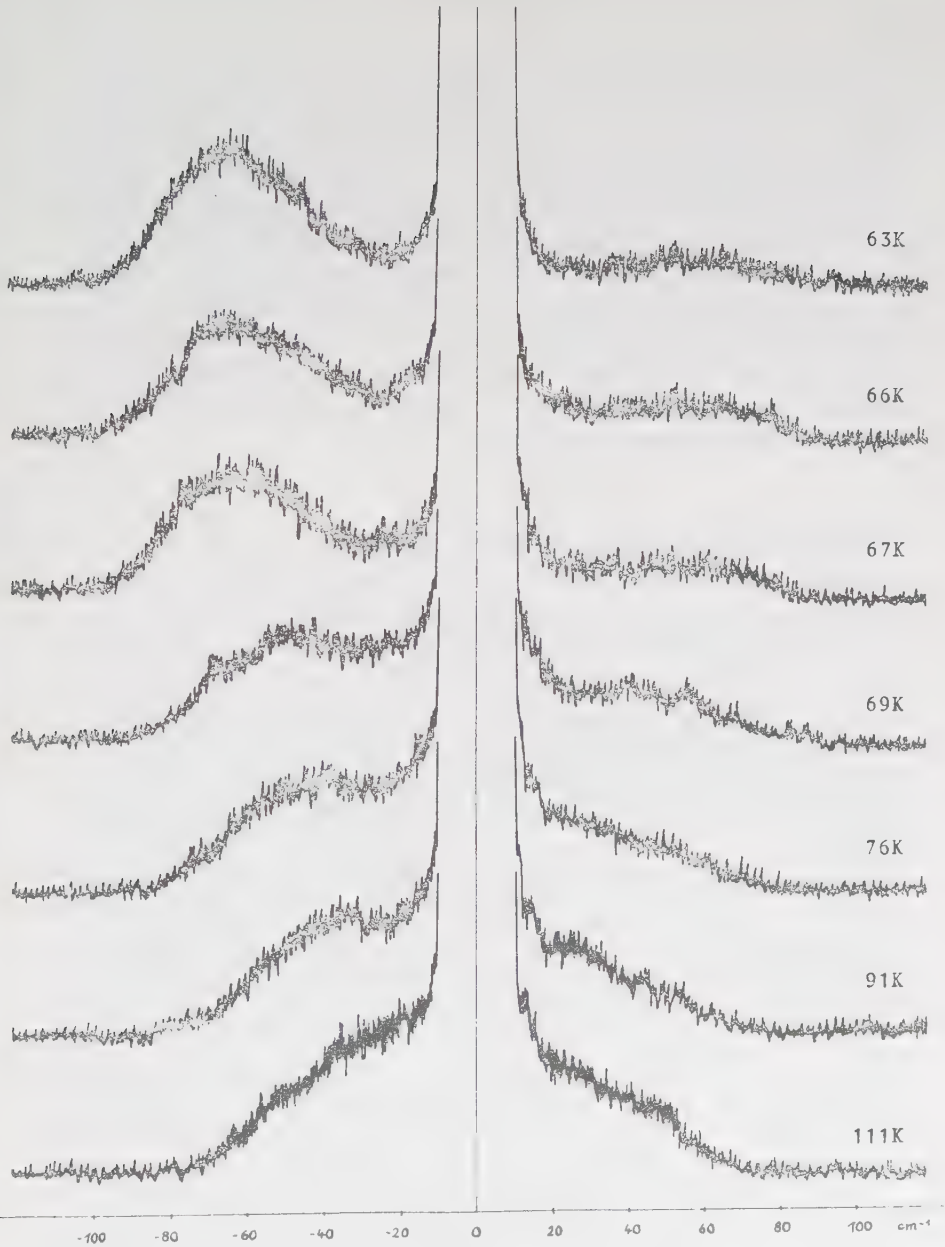


Abb. 41. Zweimagnonen-Ramanstreuung in (yz)-Streugeometrie
bei Temperaturen um und über T_N .

Die Banden verschwinden nicht bei T_N , sondern lassen sich bis etwa 80K noch gut aufgelöst und bis Raumtemperatur als Verbreiterung des Fußes der Rayleighlinie beobachten, Abb. 40 und 41. Die Temperaturabhängigkeiten der oben genannten Größen lassen sich im Experiment verschieden gut beobachten. Die Untersuchung von Wellenzahlverschiebung und HWB ist problemlos, wenn auch bei höheren Temperaturen, wo die Banden breiter werden und die Einsattelung zwischen Bande und Rayleighlinie flacher wird, die Meßwerte mit größeren Fehlern behaftet sind. Bei der Untersuchung der Intensität ergeben sich die in II.1.1. bereits erwähnten Schwierigkeiten. Die Energie und die anderen Größen werden im folgenden getrennt diskutiert.

3.3.3.1. Temperaturabhängigkeit der Energie

Im wechselwirkungsfreien Fall ist die Position des Maximums der Bande allein durch das Maximum des Imaginärteils von $\hat{L}_j^{02}(\omega)$ bestimmt, vergleiche (3.24). Da sich die verschiedenen Vorfaktoren von $\phi_j^2(\vec{k})$ in der Nähe der Oberfläche der BZ nur wenig ändern, bestimmt $\phi_j^2(\vec{k})$ zusammen mit der Zustandsdichte die Maximumposition der Bande: $2\omega_M = 97 \text{ cm}^{-1}$ in (xy)- und $2\omega_R = 107.5 \text{ cm}^{-1}$ in (xz)-Streugeometrie, wenn man alle jene Terme in $\tilde{H}_4$ mitnimmt, die bei OK zu einer Energierenormierung führen.

Die Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen dadurch, daß man in (3.24) alle Größen durch die entsprechenden renormierten ersetzt, wie es teilweise in der Literatur geschieht, führt zu einer temperaturabhängigen Position, die durch $\hat{W}(\vec{k})$ bestimmt ist. Allerdings ist dieses Vorgehen inkonsistent, wie in I.3. gezeigt wurde.

Bei konsistenter Rechnung haben auch die Realteile von $\hat{L}_j^{\alpha\beta}(\omega)$ einen Einfluß auf die Position, wobei die wesentliche Funktion $\hat{L}_j^{02}(\omega) \approx \hat{L}_j^{20}(\omega)$ ist, siehe vor der Gleichung (3.50).

In den Abbildungen 42 und 43 sind der Real- und Imaginärteil von $\hat{L}_j^{02}$ für die beiden wesentlichen Streugeometrien für 20K wiedergegeben. Der Realteil wechselt bei demselben ω -Wert sein Vorzeichen, wo der Imaginärteil sein Maximum annimmt. Dieser Wert wird im folgenden mit ω_{max} bezeichnet. Dies ist genau der

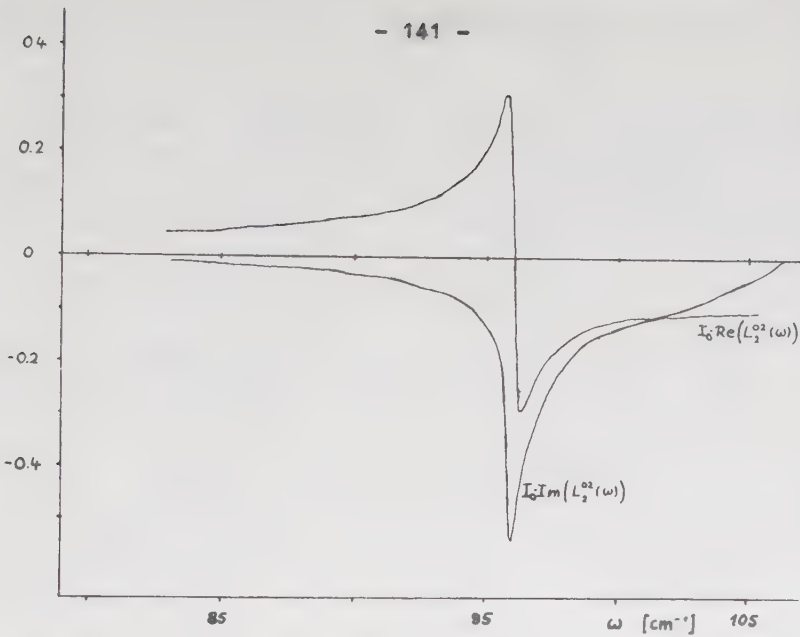


Abb. 42. Real- und Imaginärteil von $I_0 \cdot \hat{L}_j^{02}$ bei 20K für (xy)-Streuigeometrie.

Wert, wo im wechselwirkungsfreien Fall die Position der Bande liegt. Da $\text{Im} \hat{L}_j^{02}(\omega)$ wesentlich kleiner als 1 ist, wird bei $\omega_{\max}$ der Nenner praktisch gleich 1 und der Streuquerschnitt ist im wesentlichen durch $\text{Im} \hat{L}_j^{02}(\omega_{\max})$ gegeben. Bei höheren Wellenzahlen ist $\text{Re} \hat{L}_j^{02}(\omega)$ stets größer als Null, so daß der Nenner stets größer als 1 ist. Nebenbei bemerkt hat das zum Beispiel zur Folge, daß der höherenergetische Teil der (xy)-Bande, der ohne Wechselwirkung zu intensiv war, geschwächt wird. Da $\text{Im} \hat{L}_j^{02}(\omega)$ im erwähnten Energiebereich abnimmt, kann das Auftreten von $\text{Re} \hat{L}_j^{02}(\omega)$ in (3.50) zu keinem Maximum der Bande mit $\omega > \omega_{\max}$ führen.

Anders ist die Situation bei Energien kleiner als $\omega_{\max}$. Hier ist $\text{Re} \hat{L}_j^{02}(\omega)$ stets kleiner als Null und der Nenner kann ein Minimum annehmen. Dieser Wert sei im folgenden $\omega_{\min}$. Folglich kann bei Berücksichtigung der Wechselwirkung ein Maximum der Bande bei einem Energiewert kleiner als $\omega_{\max}$ auftreten. Das tatsächliche Maximum der Bande hängt nun vom aktuellen Verlauf von Real- und Imaginärteil von $\hat{L}_j^{02}(\omega)$ ab, liegt aber zwischen $\omega_{\max}$ und $\omega_{\min}$.

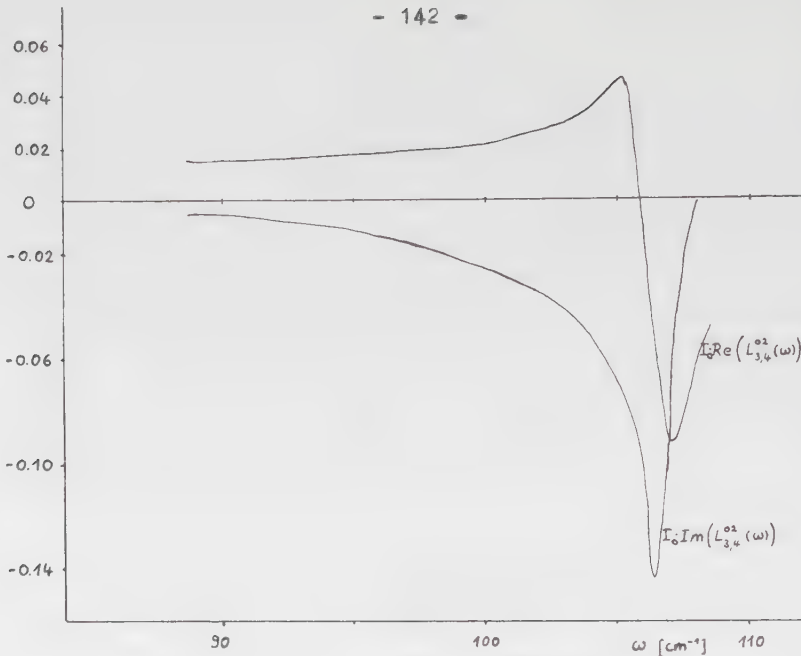


Abb. 43. Real- und Imaginärteil von $I_0 \cdot \hat{L}_j^{02}$ bei 20K für (xz)-Streuengeometrie.

Die Temperaturabhängigkeit von $\omega_{\max}$ ist durch die Renormierungsfunktion $h_{\vec{k}}(T)$ bestimmt. Bei $\omega_{\min}$ sind die Verhältnisse etwas anders. Die numerische Auswertung, die weiter unten erfolgt, zeigt, daß $h_{\vec{k}}(T)$ für große $\vec{k}$ -Vektoren nahezu unabhängig von $\vec{k}$ ist. Das bedeutet für die Zustandsdichte, daß sie bei Temperaturerhöhung als Ganzes zu niedrigeren Energien verschoben wird. Wäre die renormierte Spinwellenenergie $\hat{W}(\vec{k})$ im Resonanznenner die einzige temperaturabhängige Größe in $\hat{L}_j^{02}(\omega)$, dann würde der Temperaturverlauf von $\omega_{\min}$ ebenfalls durch $h_{\vec{k}}(T)$ beschrieben. Tatsächlich gehen aber noch die Bosefaktoren ein, so daß $|\text{Re} \hat{L}_j^{02}(\omega)|$ mit der Temperatur zu und $\omega_{\min}$ damit zusätzlich abnimmt. Allerdings ist die zusätzliche Abnahme gering, da die Zunahme der Bosefaktoren wegen der relativ großen Energien der Spinwellen auf dem Rand der BZ nur wenig ins Gewicht fällt. Damit ist der Temperaturgang der Maximumsposition der Zweimagnonenbande näherungsweise durch die Renormierungsfunktion $h_{\vec{k}}(T)$ bestimmt.

Die numerische Bestimmung der Spinwellenrenormierung für verschiedene Temperaturen erfolgte mit den Gleichungen (2.35) und (2.45), (2.46). Die effektive Temperaturabhängigkeit der drei Austauschintegrale ist durch folgende Funktionen bestimmt:

$$\begin{aligned}
 L_1: \quad 1 - \frac{2}{2sN} \sum_{\vec{p}} 2n_{\vec{p}} \sin^2(p_z \frac{c}{2}) &= 1 - \frac{1}{sN} \sum_{\vec{p}} \left[\frac{\hat{E}_{\vec{p}}}{\hat{W}_{\vec{p}}} (2\hat{N}_{\vec{p}}+1) - 1 \right] \sin^2(p_z \frac{c}{2}) \\
 J_2: \quad 1 - \frac{1}{2sN} \sum_{\vec{p}} (2n_{\vec{p}} + 2m_{\vec{p}} \sigma(\vec{p})) &= 1 - \frac{1}{2sN} \sum_{\vec{p}} \left[\frac{\hat{E}_{\vec{p}} + s\hat{I}_{\vec{p}} \sigma(\vec{p})}{\hat{W}_{\vec{p}}} (2\hat{N}_{\vec{p}}+1) - 1 \right] \\
 L_3: \quad 1 - \frac{2}{2sN} \sum_{\vec{p}} 2n_{\vec{p}} \sin^2(p_x \frac{a}{2}) &= 1 - \frac{1}{sN} \sum_{\vec{p}} \left[\frac{\hat{E}_{\vec{p}}}{\hat{W}_{\vec{p}}} (2\hat{N}_{\vec{p}}+1) - 1 \right] \sin^2(p_x \frac{a}{2}),
 \end{aligned}
 \tag{II.4}$$

wobei die Größen $n_{\vec{p}}$ und $m_{\vec{p}}$ aus (2.36) eingesetzt wurden. Mit den Konstanten aus (II.3) erhält man für die Funktionen bei OK folgende Werte:

L_1	J_2	L_3
0.9925	1.0146	0.9920

Diese Werte sind unempfindlich gegen kleine Änderungen der Austauschkonstanten und können deshalb für die Werte nach Nikotin et al. /13/ oder Okazaki et al. /12/ verwendet werden.

Im allgemeinen wird bei der Bestimmung der Austauschintegrale aus Meßergebnissen der Neutronenstreuung eine Dispersionsrelation zugrunde gelegt, in der die Renormierung bei $T=OK$ durch eine effektive Spinquantenzahl berücksichtigt wird, siehe z.B. Nikotin et al. Die effektive Spinquantenzahl ist für das tetragonal raumzentrierte Gitter durch $s(1+0.073/2s)$ gegeben, /13/. Für $s=5/2$ ist die Klammer gleich 1.0146, genau der oben angegebene Renormierungsfaktor für J_2 .

Unter Vorgabe von Werten für die von $(2\hat{N}(\vec{p})+1)$ abhängigen Summen in (II.4) wurden die renormierten Austauschintegrale und damit neue Werte für die Summen berechnet. Mit diesen Werten wurde das Verfahren wiederholt, bis Selbstkonsistenz eintrat. Die durch die Iteration bestimmten Summen bilden eine Folge von Zahlen, die sich den wahren Werten asymptotisch nähern. Somit hat das Verfahren den Nachteil, daß der wahre Wert nicht zwischen

zwei aufeinanderfolgenden iterierten Summen liegt. Aus den Folgen können jedoch Grenzwerte und damit Fehler abgeschätzt werden. Als Kriterium für die Selbstkonsistenz wurde die Summe der Beträge der relativen Differenzen aufeinanderfolgender iterierter Summen verwendet. Sie mußte unter eine vorgegebene Schranke absinken, die so gewählt war, daß die noch zu erwartende relative Änderung von $\hat{W}_{\vec{k}}(T)/\hat{W}_{\vec{k}}(0)$ kleiner als 10^{-4} war. Bei Erreichen dieser Bedingung wurde für verschiedene Symmetriepunkte der BZ das Verhältnis $\hat{W}_{\vec{k}}(T)/\hat{W}_{\vec{k}}(0)$ gebildet, das dem Faktor $h_{\vec{k}}(T)$ entspricht.

Der Temperaturgang des Renormierungsfaktors ist in Tabelle A5 im Anhang für verschiedene Symmetriepunkte zusammengestellt. Aus dieser Tabelle ist zu entnehmen, daß $h_{\vec{k}}(T)$ auf der Oberfläche der BZ tatsächlich praktisch konstant ist, und daß die Spinwellennäherung für kleine $\vec{k}$ -Werte falsche Ergebnisse liefert.

Für den Fall eines einfachen isotropen Antiferromagneten kann man zeigen, daß dieses Verfahren für $T/(s^2 z_2 |J_2| h^2(T) \cdot 1.4384) < 1$ mit $h(T)$ aus (2.44) sicher konvergiert. Mit den Werten für MnF_2 erhält man als Grenzbedingung $T/h^2(T) < 170$, die für $T < 65\text{K}$ und $h(T) < 0.62$ sicher erfüllt ist. Die explizite Berechnung bestätigt diese Abschätzung. Allerdings wird die Konvergenz umso schlechter, je größer $T/h^2(T)$ wird.

In der Tabelle A6 im Anhang ist der Temperaturgang der Maximumposition der beiden Zweimagnonenbanden mit den auf OK bezogenen Werten aufgeführt. Die beiden Banden verhalten sich praktisch gleich. In den Abb. 44 und 45 ist Theorie und Experiment miteinander verglichen. Die Übereinstimmung bis 63K ist außerordentlich gut. Für höhere Temperaturen wurden keine theoretischen Punkte mehr berechnet, da die Konvergenz zu schlecht wurde.

Dieses Ergebnis ist erstaunlich, denn die theoretische Formel versagt wie erwähnt bei der Beschreibung langwelliger Spinwellen. Die Energie dieser Spinwellen nimmt nach dieser Theorie wesentlich schwächer mit steigender Temperatur ab als die der kurzwelligen oder gar als die AFMR-Frequenz. Zudem muß man berücksichtigen, daß das Spinwellenkonzept für langwellige Magnonen eher seine Berechtigung verliert als für kurzwellige, weil wegen des Fermi-charakters des Spins eine gewisse statistische Hinderung

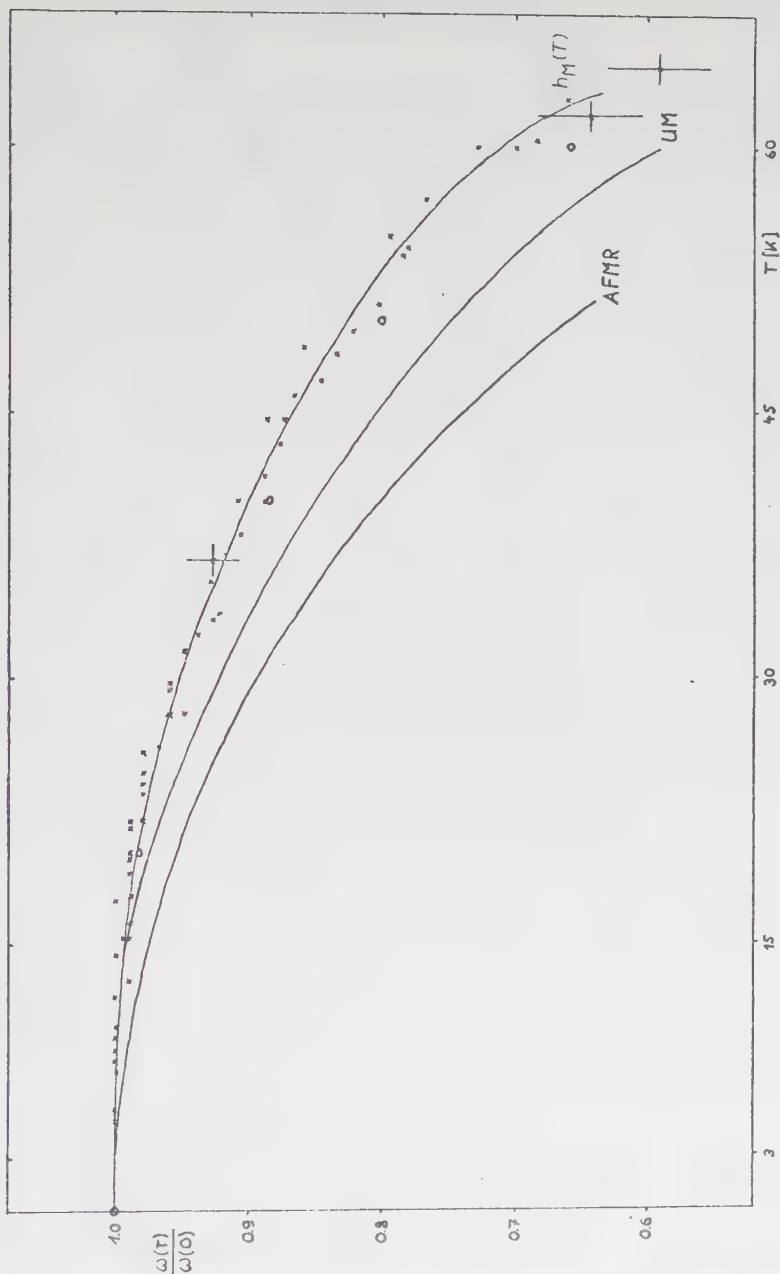


Abb. 44. Normierte Maximumsenergie der DB_{1g} -Bande, $\omega(0)=98 \text{ cm}^{-1}$,
 verglichen mit der Energienormierungsfunktion $h_M(T)$
 und mit dem Temperaturgang der Untergittermagnetisierung
 UM nach (2.39) und der AFMR-Frequenz nach /87/.



Abb. 45. Normierte Maximumenergie der $DB_{2,3g}$ -Bande, $\omega(0)=107 \text{ cm}^{-1}$, verglichen mit der Energienormierungsfunktion $h_K(T)$, und mit dem Temperaturgang der Untergittermagnetisierung UM nach (2.39) und der AFMR-Frequenz nach /87/.

dafür besteht, daß sich mehrere umgeklappte Spins an einem Ort befinden, Dyson /5/, wie es das Spinwellenkonzept für langwellige Magnonen bei höheren Temperaturen fordern würde.

Dieser Tatsache wird zufällig in der theoretischen Formel dadurch Rechnung getragen, daß die Energie dieser Spinwellen schwächer mit zunehmender Temperatur abnimmt als sie sollte, wodurch die Bosefaktoren weniger stark zunehmen. Außerdem fällt der kritische Bereich in der Summe über die BZ wenig ins Gewicht, weil die überwiegende Anzahl aller Spinwellen kurzwellig ist, - in einem kubischen Gitter beträgt die Anzahl der Punkte in der BZ mit $|\vec{k}| < |\vec{k}_{\max}|/2$ nur $1/8$ der Gesamtzahl aller Punkte -.

In II.3.3.2. wurde darauf hingewiesen, daß die Maximumpositionen der Banden bei höheren Temperaturen nicht allein durch den Faktor $\hbar\vec{k}(T)$ beschrieben werden. Der Grund dafür ist, daß die Wechselwirkungsenergie temperaturabhängig ist. In der obigen Diskussion wurde sie als temperaturunabhängig angenommen. Daß dies bei höheren Temperaturen nur eine Näherung ist, ist aus den Abbildungen 44 und 45 zu entnehmen. Dort sind die auf den Wert bei OK bezogenen Energien für verschiedene Temperaturen eingetragen, wie sie sich aus den Berechnungen der Banden unter Einschluß der Wechselwirkung ergeben. Der Temperaturgang ist tatsächlich etwas stärker als die Energierenormierung.

Aus den erwähnten Gründen muß man die gute Übereinstimmung der experimentellen Werte mit der Renormierungsfunktion bei höheren Temperaturen als Zufall betrachten. Allerdings ist es interessant, daß man einen theoretischen Ausdruck zur Hand hat, der den tatsächlichen Temperaturverlauf der Energie bis wenige Grade unterhalb von T_N beschreibt.

Eine wesentliche Eigenschaft der Zweimagnonenbanden ist ihre endliche Ramanverschiebung auch oberhalb der Néeltemperatur. In der Umgebung von T_N fällt die Energie stark ab, Abb. 46, und erreicht bei T_N etwa die Hälfte des Tieftemperaturwertes. Oberhalb von T_N geht die auf den Wert bei OK bezogene Energie in eine schwach fallende Kurve über.

Bei T_N verschwindet die langreichweitige Ordnung, während benachbarte Spins weiterhin korreliert bleiben. Im Ramaneffekt

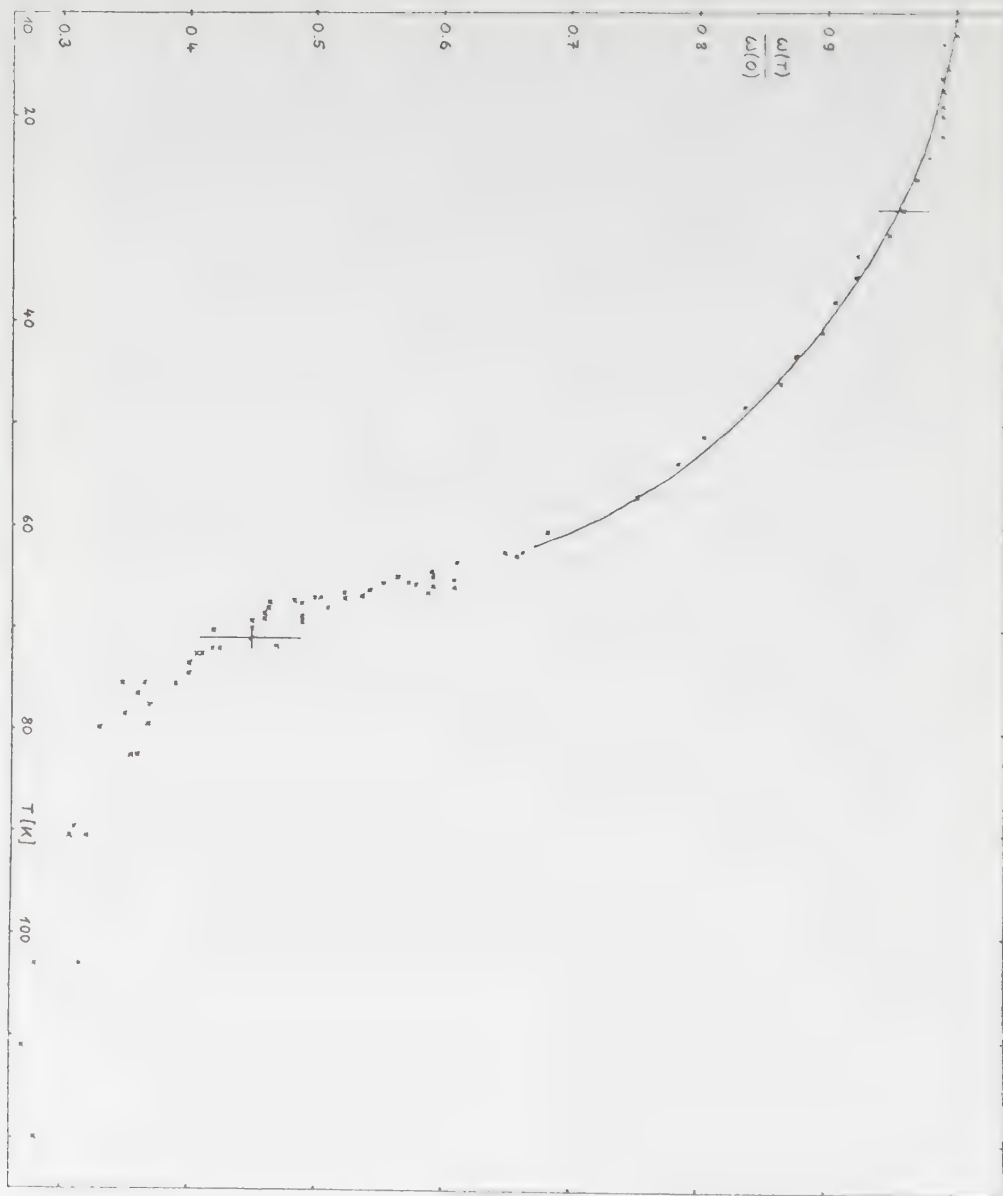


Abb. 46. Normierte Maximumsenergie der Zweimagnonenbanden
für Temperaturen von 10 bis 120K.

Ausgezogene Kurve: Energienormierungsfunktion $h_M(T)$.

wird wegen der Zweizentrenanregung gerade die kurzreichweitige Ordnung beobachtet, so daß bei T_N eine endliche Ramanverschiebung bestehen bleiben muß. Sie verschwindet theoretisch erst bei $T \rightarrow \infty$, wenn die Korrelation der Spins vollkommen aufgehoben ist.

3.3.3.2. Vergleich der Messungen mit der Theorie von Pershan und Oseroff

Pershan und Oseroff /68/ stellen folgenden Zusammenhang zwischen der Abnahme der Energie kurzwelliger Spinwellen bei Temperaturerhöhung und der von der magnetischen Ordnung herrührenden inneren Energie her:

$$\omega(0) - \omega(T) = \frac{1}{\sqrt{s(s+1)}} \int_0^T C_M(T') dT' . \quad (II.5)$$

C_M ist der von den Spins kommende Beitrag zur spezifischen Wärme. Die Gleichung (II.5) enthält keine anzupassenden Parameter. Die Autoren überprüfen diese Gleichung, indem sie die mit Messungen der spezifischen Wärme von NiF_2 , MnF_2 und FeF_2 nach Stout und Catalano erhaltenen Kurven mit den Messungen der Spinwellenenergien nach verschiedenen Autoren vergleichen. Für NiF_2 finden sie bis T_N außerordentlich gute Übereinstimmung. Die Werte für $\omega(T)$ waren dabei den Ramanmessungen von Fleury /70/ entnommen. Die Ramanmessungen für FeF_2 von Fleury et al. /22/ waren zu ungenau, aber mit den IR-Daten von Halley und Silvera /72/ ergibt sich ebenfalls gute Übereinstimmung, allerdings nur bis etwa $0.7 \cdot T_N$.

Die Pershan und Oseroff vorliegenden Daten $\omega(T)$ von MnF_2 ließen dagegen nur einen ungefähren Vergleich zu.

In der vorliegenden Arbeit wurde der Temperaturverlauf von ω_M und ω_R durch eine Vielzahl von Meßpunkten festgestellt und außerdem eine Renormierungsfunktion berechnet, die den gemessenen Temperaturverlauf der Energie bis 63K sehr gut wiedergibt. Deshalb ist es sinnvoll, diese Ramanmessungen mit den Aussagen der obigen Gleichung zu vergleichen. Die Werte von $C_M(T)$ wurden der Arbeit /69/ entnommen. In Tabelle A7 im Anhang sind die Meß-

werte aus /69/, die Integrale, die auf cm^{-1} umgerechneten Werte und $1 - h(T)$, siehe unten, angegeben.

$C_M(T)$ ist eine makroskopische Größe, die von der Gesamtheit aller magnetischen Anregungen abhängt. Da nach /68/ im wesentlichen nur Spinwellen in der Nähe der Oberfläche der BZ einen Beitrag liefern, erwartet man bei Gültigkeit von (II.5) Übereinstimmung für Systeme, deren Zustandsdichte ein einziges Maximum besitzt. Das ist bei NiF_2 und FeF_2 der Fall. Beim letzteren ist praktisch nur J_2 wesentlich von Null verschieden. Man beobachtet bei Ramanstreuung in (xy)- und (xz)-Streugeometrie folglich zwei Banden mit etwa gleicher Ramanverschiebung.

NiF_2 hat wie MnF_2 und FeF_2 im paramagnetischen Zustand Rutilstruktur. Im antiferromagnetischen Zustand ordnen sich die Spins dagegen parallel zur y-Achse an, mit einer kleinen Verkantung in die x-Richtung. Diese Ordnung führt zu einer Dispersionskurve auf dem Rand der BZ, die im allgemeinen zweifach entartet ist, siehe Joshua und Cracknell /73/. Die Zustandsdichte hat nur ein Maximum, siehe Joshua /74/.

Bei MnF_2 kann das ferromagnetische Austauschintegral L_1 dagegen nicht vernachlässigt werden. Es führt zu einer Aufspaltung der Dispersionskurve auf dem Rand der BZ, so daß die Zustandsdichte im wesentlichen zwei Maxima im Abstand von 5 cm^{-1} hat. Das makroskopische $C_M(T)$ wird folglich von einer gewichteten Mittelung über die kurzwelligen Magnonen verschiedener Energien abhängen.

Zur Prüfung der Gleichung (II.5) wurde eine gleichgewichtete Mittelung über die Energien derjenigen Spinwellen durchgeführt, die den beiden Maxima der Zustandsdichte entsprechen. Dies ist nur eine erste Näherung, weil die Anzahl der höherenergetischen Spinwellen größer ist, siehe die Zustandsdichte in Abb. 3.

Aus den Ramanmessungen erhält man nicht direkt die Energie der Spinwellen, sondern $2\omega(\vec{k}) - \omega_{\text{int}}$, wobei ω_{int} die Wechselwirkungsenergie der beiden Spinwellen ist. Bei Vernachlässigung der $\vec{k}$ - und T-Abhängigkeit von ω_{int} , fällt diese aus der Differenz der im Ramaneffekt gemessenen Energien heraus. Man kann für T → OK eine mittlere Spinwellenenergie auf dem Rand der BZ bestimmen: 51 cm^{-1} . Mit diesem Wert und mit $h_M(T)$ aus Abb. 44 wurde $\omega(0) - \omega(T)$ bestimmt und in Abb. 47 mit der theoretischen

Kurve verglichen. Wie man sieht, ist die Übereinstimmung innerhalb der Meßfehler bis 40K befriedigend. Bei höheren Temperaturen tritt dagegen eine deutliche Abweichung auf. Die Ursache dafür ist, daß C_M vom gesamten Spinsystem abhängt, während im Ramaneffekt nur kurzwellige Magnonen beobachtet werden. Es kann aber der Schluß von Pershan und Oseroff unterstützt werden, daß die Ramanmessungen der Zweimagnonenbanden eine geeignete experimentelle Möglichkeit darstellen, den von der magnetischen Ordnung herrührenden Anteil der spezifischen Wärme von Antiferromagneten bis zu $0.7 \cdot T_N$ zu bestimmen.

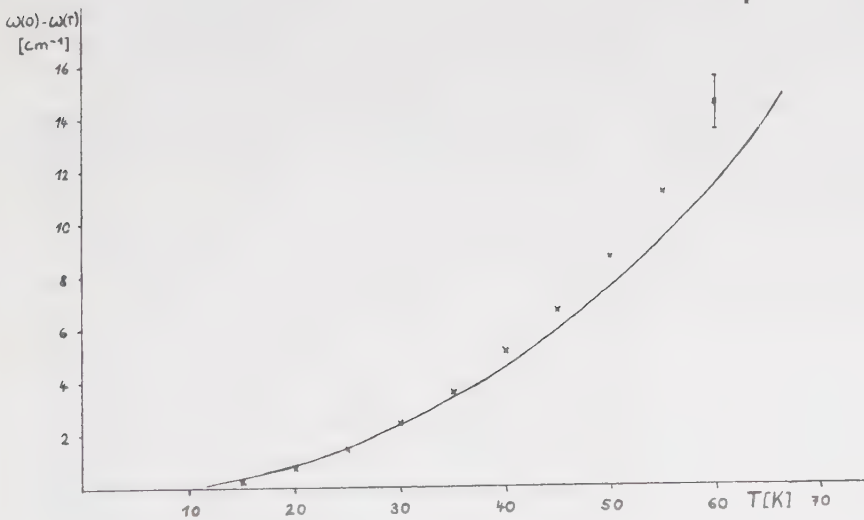


Abb. 47. Vergleich der theoretischen Kurve nach (II.5) mit dem Temperaturgang einer mittleren Spinwellenenergie auf dem Rand der BZ, siehe Text.

3.3.4. Temperaturverhalten von Intensität und Halbwertsbreite

3.3.4.1. Integrierte Intensität

Da die integrierte Intensität der Zweimañnonenbanden unabhängig von der Dämpfung der Spinwellen ist, wird sie getrennt von HWB und Maximumsintensität diskutiert.

Der Temperaturgang wurde durch Bezug auf die Intensität des E_g - und A_{1g} -Phonons bestimmt, wie es bei der Untersuchung des B_{1g} -Phonons von MnF_2 beschrieben wurde. Da die Banden bei Temperaturerhöhung auf die Erregerlinie zuwandern, müssen von etwa 60K an Rayleighlinie und Banden entzerrt werden. Die Flanke der Erregerlinie wurde dazu nach den bei 5K beobachteten Spektren festgelegt. Deshalb sind die gemessenen Intensitätswerte für $T \geq 60K$ mit großen Fehlern, schätzungsweise 20% behaftet.

Die berechnete Intensität hängt vom Intensitätsfaktor $\langle \alpha \rangle^2$ ab. In diesen geht der Anisotropiefaktor η ein, siehe (3.35). In der Abb. 48 ist $\langle \alpha \rangle$ für verschiedene Temperaturen als Funktion von η dargestellt. Die Steigungen werden erst von etwa 50K an merklich verschieden. Die Folge davon ist, daß $\langle \alpha(T) \rangle^2 / \langle \alpha(0) \rangle^2$ und damit auch der Temperaturgang der theoretischen Intensität sehr schwach von η abhängt.

Durch Vergleich der experimentellen Kurve von $I(T)/I(0)$ für die (xy)-Bande mit der entsprechenden theoretischen Kurve wurde ein Wert für η abgeschätzt:

$$\eta_{\text{exp}} = 2 \pm 0.6$$

Die im folgenden angegebenen theoretischen Intensitätswerte sind stets mit $\eta=2$ berechnet, siehe auch /71/.

In der Abb. 49 ist der experimentell bestimmte Temperaturverlauf der integrierten Intensität der DB_{1g} -Bande dargestellt und mit der theoretischen Kurve für $\eta=2$ verglichen. In Anbetracht des großen Fehlers vor allem bei höheren Temperaturen, siehe oben, erhält man befriedigende Übereinstimmung bis nahe 60K. In der anderen Streugeometrie wurden wesentlich weniger Messungen durchgeführt, weil die Intensität um mehr als einen Faktor 2 geringer ist. Dennoch findet man auch dort befriedigende Übereinstimmung mit der theoretischen Kurve, die in die Abb. 49 mit eingezeichnet wurde. Die Intensitätszunahme ist in dieser Streugeometrie deutlich geringer.

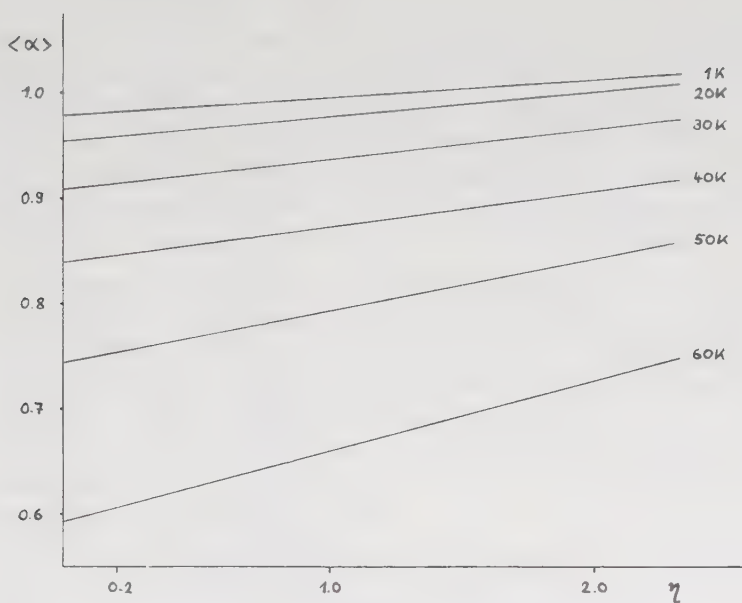


Abb. 48. Abhängigkeit des Intensitätsfaktors $\langle \alpha(T) \rangle$ vom Anisotropiefaktor η .

Das Experiment ergibt ein Intensitätsverhältnis von (xy)- zur (xz)-Bande von etwa 2.5 ± 0.5 zu 1. Das theoretische Intensitätsverhältnis ist für $B'_3/B'_4 = 1$, siehe Gleichung (3.10), konsistent mit diesem experimentellen Wert. Das bedeutet, daß man MnF_2 auch im Hinblick auf die Kopplungsgrößen B_i im effektiven Hamiltonoperator als isotrop ansehen kann.

3.3.4.2. Maximumsintensität und Halbwertsbreite

Ein weiteres Kennzeichen der Zweimagnonenbanden ist, neben der Abnahme der Energie, die starke Zunahme der Halbwertsbreite mit steigender Temperatur, siehe Abb. 38 und 39. Mit dieser Zunahme ist eine Abnahme der Maximumsintensität verbunden. Beide experi-

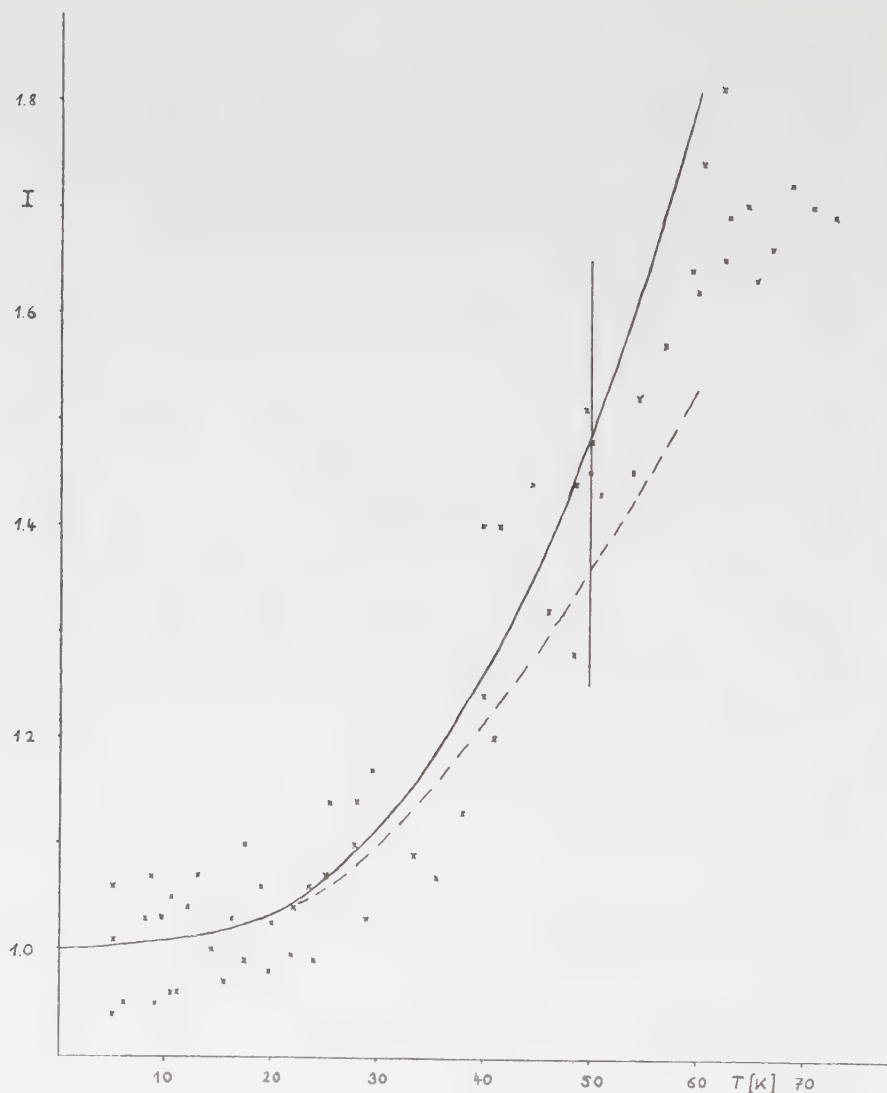


Abb. 49. Temperaturabhängigkeit der integrierten Intensität der DB_{1g} -Bande. Ausgezogene Kurve: Theoretischer Temperaturgang der Intensität für die DB_{1g} -Bande, gestrichelte Kurve: $DB_{2,3g}$ -Bande. Die theoretischen Kurven wurden aus den Berechnungen der Spektren bei Berücksichtigung der Spinwellen-Wechselwirkung erhalten.

mentellen Ergebnissen können, im Gegensatz zum Verhalten von Energie und integrierter Intensität, von der in Teil I dieser Arbeit beschriebenen dämpfungsfreien Theorie nicht richtig beschrieben werden. In den Abbildungen 36 und 37 wurde bereits der theoretische Temperaturgang der Banden dargestellt. Die HWB bleibt etwa konstant und die Maximumsintensität nimmt zu, im krassen Gegensatz zum Experiment, Abb. 38 und 39.

Der Temperaturverlauf der HWB der (xy)-Bande ist in der Abb. 50 wiedergegeben. Von etwa 4 cm^{-1} bei einer Spaltbreite von 2 cm^{-1} bei 5K nimmt die HWB auf etwa 45 cm^{-1} bei der Néeltemperatur zu. Den Wert bei 5K ergibt die Rechnung richtig. Gleichzeitig zeigt die Rechnung auch, siehe II.3.3.2., daß die HWB der DB_{1g^-} -Bande bei dieser Temperatur spaltbedingt ist. Das geht auch aus Abb. 50 hervor, wo von etwa 20K an Meßwerte bei 4 cm^{-1} Spaltbreite eingetragen sind.

In der anderen Streugeometrie erhält man einen ähnlichen Verlauf. Ein Unterschied ergibt sich allerdings bei tiefen Temperaturen. Die Bande ist wesentlich breiter, etwa 9 cm^{-1} . Bei Temperaturen in der Nähe von T_N findet man dagegen Werte wie bei der (xy)-Bande.

Es war nicht möglich, die HWB bei Temperaturen zu bestimmen, die wesentlich über T_N liegen. Der Grund ist einmal die sehr starke Verschiebung der Banden auf die Rayleighlinie zu, siehe Abb. 40 oder 41, und zum anderen die große HWB. Daraus ergibt sich eine große Überlappung der Banden mit der Rayleighlinie, so daß die niederenergetische Flanke der Banden nur nach Entzerren der Linien nach vorheriger Festlegung des Profils der Erregerlinie zu erhalten ist.

Man kann jedoch, solange das Bandenmaximum deutlich zu lokalisieren ist, unter Annahme eines symmetrischen Bandenprofils aus dem höherenergetischen Teil eine HWB der Banden abschätzen. Da die Banden auch bei höheren Temperaturen ihre Unsymmetrie behalten, ist dieser Schätzwert eine untere Grenze für die tatsächliche HWB. Man erhält damit qualitativ den Verlauf für $T > T_N$ wie in Abb. 50. Ob sich bei T_N ein Maximum ergibt, kann aufgrund der vorliegenden Messungen nicht entschieden werden. Dazu wäre es notwendig gewesen, die Zweimaßonenspektren in diesem

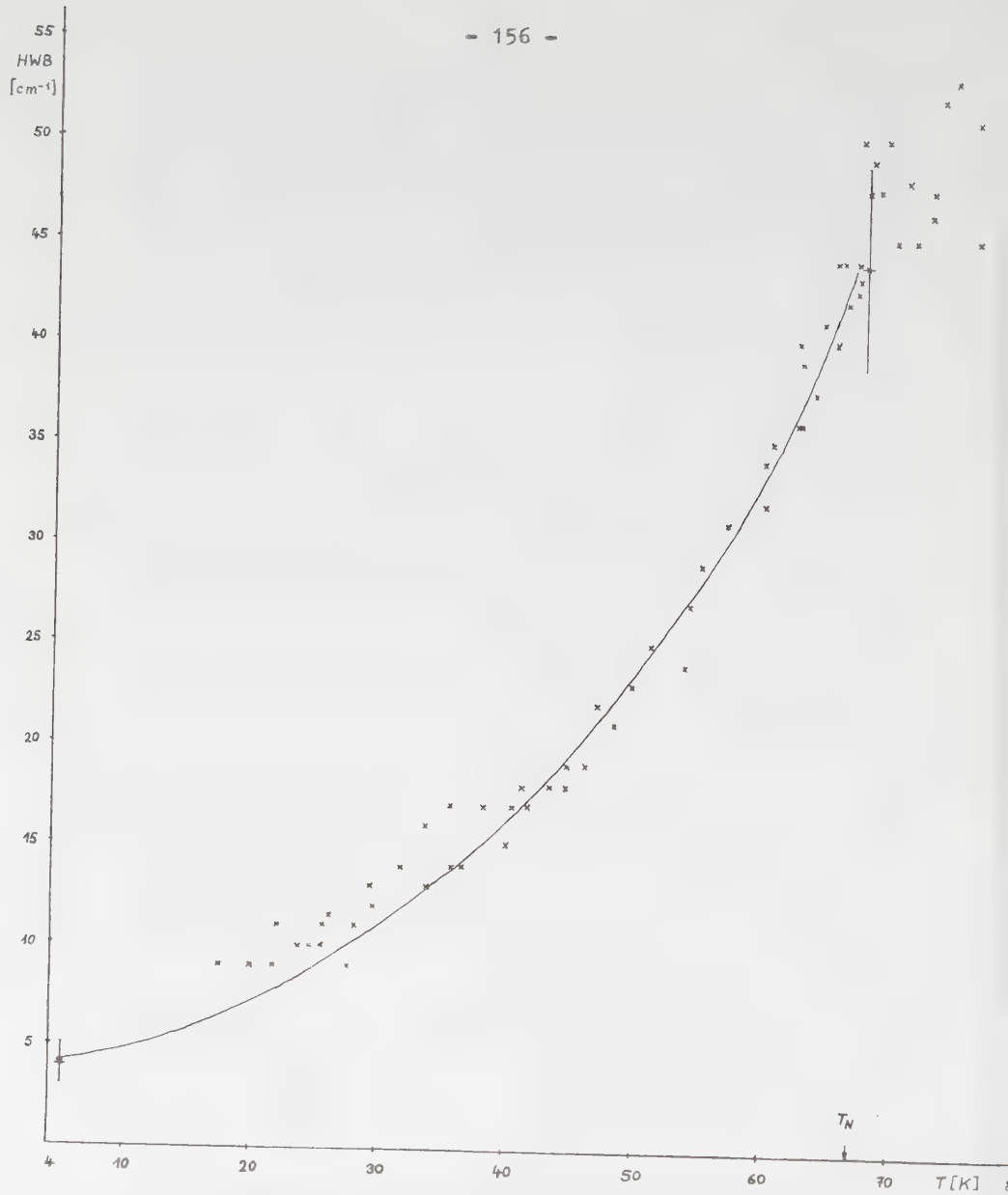


Abb. 50. Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreite der DB_{1g} -Zweimagnonenbande.

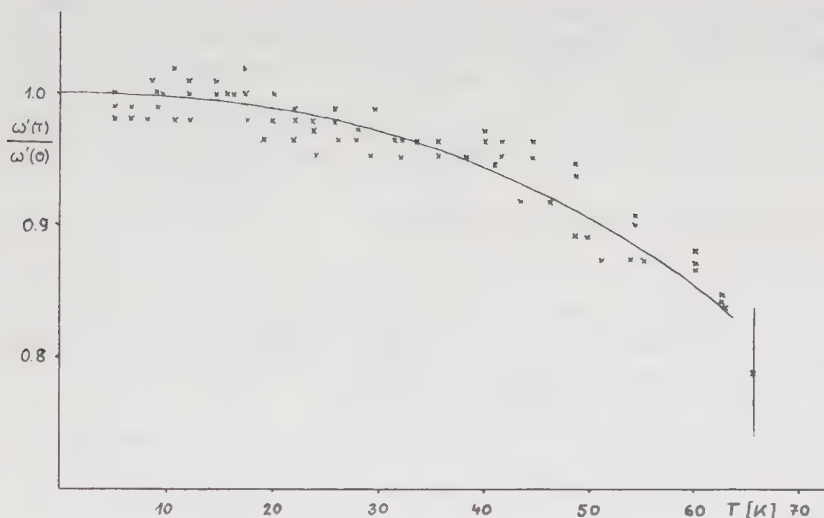


Abb. 51. Temperaturgang der maximalen Energie in den Zweimagnonenbanden. $\omega'(0) \approx 114 \text{ cm}^{-1}$.

Temperaturbereich in sehr engen Temperaturschritten zu untersuchen. Das war experimentell nicht möglich, weil sich bei Verwendung von LHe lange Meßreihen wegen der großen Abdampfraten verbieten, und bei Verwendung von LN_2 unter erniedrigtem Druck der zu untersuchende Temperaturbereich nur wenig über der Temperatur des Kühlmittels liegt, wo der Temperaturregler nicht ausreichend stabil arbeitet.

In der Abb. 51 ist der Temperaturverlauf der maximalen Wellenzahlverschiebung in den Zweimagnonenbanden relativ zu ihrem Tieftemperaturwert dargestellt. Diese Energie entspricht bei OK und Vernachlässigung der Dämpfung dem Wert $2\omega_Z$. Vergleicht man diese Abbildung mit Abb. 44 oder 45, dann erkennt man, daß die Abnahme dieser maximalen Energie wesentlich geringer als die des Maximums ist.

Um dieses Verhalten zu beschreiben, muß die Dämpfung der Magnonen berücksichtigt werden. Dies geschah phänomenologisch,

indem in die Gleichungen für den Streuquerschnitt formal Dämpfungskonstanten $\Gamma_{\vec{k}}$ dadurch eingeführt wurden, daß $\omega \pm i\epsilon$ durch $\omega \pm i(\epsilon + \Gamma_{\vec{k}})$ ersetzt wurde. Das führt dazu, daß in den Realteilen

statt der Hauptwerte $\frac{P}{\omega \pm 2W(\vec{k})}$ nun $\frac{\omega \pm 2W(\vec{k})}{(\omega \pm 2W(\vec{k}))^2 + 4\Gamma_{\vec{k}}^2}$ und

in den Imaginärteilen für $\delta(\omega \pm 2W_{\vec{k}})$ nun $\frac{2\Gamma_{\vec{k}}}{(\omega \pm 2W(\vec{k}))^2 + 4\Gamma_{\vec{k}}^2}$

steht.

In den Rechnungen wurde die Dämpfung unabhängig von $\vec{k}$ angenommen, da zur Zweimagnonen-Ramanstreuung im wesentlichen nur Spinwellen auf dem Rand der BZ beitragen und diese sich in der Dämpfung nur wenig unterscheiden werden.

Für diese Annahme gibt es eine experimentelle Bestätigung: Im gesamten Temperaturbereich, in dem die entsprechenden Größen gemessen werden konnten, wurde festgestellt, daß das Verhältnis des Produkts aus HWB und Maximumsintensität zur integrierten Intensität konstant war. Dieses Ergebnis ist nur dann selbstverständlich, wenn die Dämpfung für alle Magnonenzustände die zur Bande beitragen, gleich ist.

Dieses Ergebnis erlaubte es auch, die Dämpfungskonstanten durch Berechnung der Maximumsintensitäten der Banden abzuschätzen, ohne daß das Spektrum soweit berechnet werden mußte, daß sich die HWB bestimmen ließ.

In der Tabelle 8 sind die Ergebnisse dieser Rechnungen zusammengestellt.

Tabelle 8. Ergebnisse der Rechnungen mit Dämpfung der Spinwellen.

T [K]	$\Gamma [\text{cm}^{-1}]$	HWB $[\text{cm}^{-1}]$		Maximumsintensität	
		(xy)		(xy)	
		ber.	gem.	ber.	gem.
1	0	6.5	6	7.5	10
1	1	8	6	9.5	10
40	6	17.5	17	19	18
50	10	25.5	24	26	25
				0.59	0.66±0.1
				0.46	0.55±0.1

Die theoretischen Spektren wurden für 4 cm^{-1} Spaltbreite gefaltet.



Abb. 52. DB_{1g} -Zweimagnonenbande in (xy)-Streugeometrie bei 40K.
 Experimentelle Kurve (ausgezogen) wie in Abb. 34.
 Gestrichelte Kurve: Spinwellentheorie mit Dämpfung,
 Dämpfungskonstante $\Gamma = 6 \text{ cm}^{-1}$.

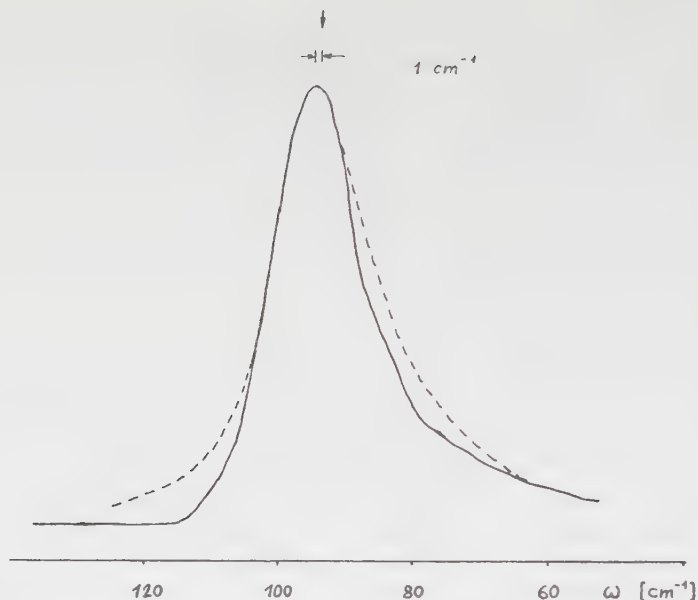


Abb. 53. $\text{DB}_{2,3g}$ -Zweimagnonenbande in (xz)-Streuengeometrie bei 40K. Experimentelle Kurve (ausgezogen) wie in Abb. 35. Gestrichelte Kurve: Spinwellentheorie mit Dämpfung, Dämpfungskonstante $\Gamma = 6 \text{ cm}^{-1}$.

In der Tabelle 8 wurde auch ein Γ für 1K abgeschätzt, um die gerechnete der beobachteten HWB der (xz)-Bande anzupassen. Dabei ergibt sich aber die HWB der (xy)-Bande zu groß.

Die notwendigen Dämpfungskonstanten sind recht groß, etwa 22% der Spinwellenenergie bei 50K. Davies et al. /34/ versuchten für KNiF_3 Dämpfungskonstanten theoretisch abzuschätzen und fanden Werte, die um mindestens eine Größenordnung kleiner waren, als die zur Erklärung der Banden notwendigen. Die theoretische Begründung der großen Spinwellendämpfung steht bis heute aus.

Aus der Tabelle 8 ist zu entnehmen, daß die Berücksichtigung der Dämpfung die Zunahme der Halbwertsbreiten und die Abnahme der Maximumsintensität innerhalb der Meßfehler konsistent beschreibt. Berücksichtigt man, daß die theoretischen Halbwertsbreiten durch die Wahl von Γ etwas zu groß sind, wird die Übereinstimmung der Maximumsintensität besser.

In den Abbildungen 52 und 53 sind die theoretischen Spektren bei Berücksichtigung der Dämpfung mit den experimentellen bei 40K verglichen. An der Maximumsposition ändert sich gegenüber dem dämpfungsfreien Fall nichts, siehe Abb. 34 und 35. Die theoretischen Banden haben jedoch keinerlei Struktur mehr, im Gegensatz zu den experimentellen. Außerdem sind die höherenergetischen Ausläufer der theoretischen Banden wesentlich zu intensiv.

Als Zusammenfassung dieses Abschnitts kann folgendes festgestellt werden: Die Theorie in Teil I dieser Arbeit vermag die experimentellen Ergebnisse bis etwa 20K in allen Aspekten befriedigend zu beschreiben. Bei höheren Temperaturen dagegen genügt die dämpfungsfreie Theorie zur Beschreibung von Halbwertsbreite und Maximumsintensität nicht mehr, während die integrierte Intensität und die Maximumsposition von der dämpfungsfreien Theorie bis nahe T_N befriedigend erklärt werden.

Die Berücksichtigung einer phänomenologischen Dämpfung der Spinwellen bringt hinsichtlich der Halbwertsbreite und der Maximumsintensität eine wesentliche Verbesserung, während bei den Profilen der Banden, besonders in den Ausläufern, eine Verschlechterung dadurch auftritt, daß die theoretischen Banden keinerlei Struktur mehr aufweisen. Eine befriedigende Theorie der Spinwellendämpfung steht noch aus.

III. Untersuchung der Fluoreszenz von MnF_2 im Bereich von $18\,500\text{ cm}^{-1}$ bis $17\,000\text{ cm}^{-1}$

Bei der Anregung von MnF_2 mit den blauen und grünen Laserlinien zwischen 457.9 nm und 514.5 nm beobachtet man eine orangerote Emission der Probe, deren Maximum bei Raumtemperatur bei etwa $17\,600\text{ cm}^{-1}$ liegt. Bei Abkühlung nimmt die Intensität stark zu. Außerdem wird die Emission geringfügig langwelliger. Bei LHe-Temperaturen liegt das Maximum im gelben Spektralbereich bei etwa $17\,300\text{ cm}^{-1}$. Bei Abkühlung unterhalb von $50\text{--}60\text{ K}$ beobachtet man eine große Anzahl von Linien, die teilweise äußerst intensiv sind und die ein interessantes Temperaturverhalten zeigen. 1965 beobachteten Greene, Sell et al. /75/ bei der Untersuchung der Absorption von MnF_2 bei 2 K zwischen $18\,400$ und $18\,500\text{ cm}^{-1}$ eine Struktur von fünf Linien, Abb. 54, von denen sie eine Bande aufgrund der spektralen Lage, des Profils und der Temperaturabhängigkeit als Spinwellenseitenbande zu einer anderen Linie dieser Gruppe interpretieren. Dies war nahezu gleichzeitig mit der Beobachtung der Zweimagnonenabsorption an FeF_2 durch Halley und Silvera /24/ die erste Beobachtung von Spinwellen im Sichtbaren oder im IR. In der Folgezeit wurde diese Struktur weiter untersucht, /16/, und zwei weitere Linien konnten als Spinwellen-

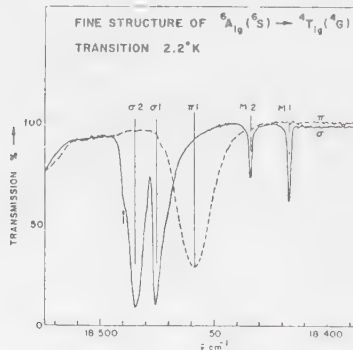


Abb. 54. Feinstruktur der Absorption von MnF_2 bei $18\,500\text{ cm}^{-1}$ bei der Temperatur 2.2 K . nach /75/.

seitenbanden zugeordnet werden, während die restlichen zwei Linien der Struktur als Exzitonen interpretiert werden. Die Zuordnungen wurden unterstützt durch Messungen im Magnetfeld, /76/, und bei uniaxialem Druck /77/. Meltzer et al. /78/ beobachteten an MnF_2 Spinwellenseitenbanden zu elektronischen Übergängen zu anderen angeregten Zuständen des Mn^{++} -Ions. Auch in anderen Materialien wurden Magnonenseitenbanden beobachtet /79/.

1.1. Die Zustände des Mn^{++} -Ions im Kristallfeld

Die Elektronenkonfiguration von Mn^{++} ist $3d^5$. Die 252 möglichen Zustände dieser Konfiguration sind wegen der Coulombwechselwirkung im freien Atom in folgende Terme aufgespalten, /57/, S. 245:

$${}^6S; \quad {}^4P, {}^4D, {}^4F, {}^4G; \quad {}^2S, {}^2P, {}^3D, {}^2F, {}^2G, {}^2H, {}^2I.$$

Nach der Hund'schen Regel ist der 6S -Term der Grundzustand. Nach Abb. 1 ist jedes Mn^{++} -Ion im MnF_2 -Kristall in erster Näherung von einem regulären Oktaeder von 6 F^- -Ionen umgeben, so daß die Lagesymmetrie im paramagnetischen Zustand näherungsweise O_h ist. Da die Basisfläche des Oktaeders kein Quadrat ist, erniedrigt sich die tatsächliche Lagesymmetrie für $T > T_N$ auf D_{2h} . Im antiferromagnetischen Zustand sind die beiden z-Richtungen für ein Ion nicht mehr äquivalent. Die Lagesymmetrie wird nunmehr durch die magnetische Gruppe $D_{2h}(C_{2h})$, siehe II.3.1., beschrieben. Die Tabellen in /80/ sind ein nützliches Hilfsmittel die Aufspaltung der Terme eines freien Ions im Kristallfeld unter Berücksichtigung des Zeitinversionsoperators zu finden.

Das Absorptionsspektrum von MnF_2 im Bereich von 600 bis 300 nm wurde von Stout /59/ gemessen. Das α -Spektrum bei Raumtemperatur, das sich praktisch nicht vom σ - oder π -Spektrum unterscheidet, ist in der Abb. 55 gezeigt. Die Zustände sind nach den irreduziblen Darstellungen der Gruppe O_h bezeichnet, Bezeichnung nach /52/, wobei in Klammern der Zustand des freien Ions angegeben wurde. Mit L ist die in den Experimenten zu dieser Arbeit verwendete Laserlinie 476.5 nm eingezeichnet. Wie

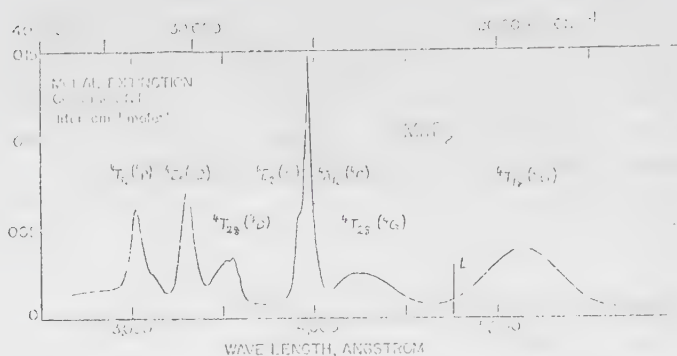


Abb. 55. Absorptionsspektrum von MnF_2 bei 300K nach /59/.

L: spektrale Lage der 476.5 nm-Linie des Argonionenlasers.

man sieht, erfolgt die Anregung nur etwa 1500 cm^{-1} oberhalb des Maximums des Zustandes $T_{1g}(^4G)$ in einem Spektralbereich, in dem noch eine geringe Absorption vorhanden ist. Bei den langwelligeren Linien des Argonlasers ist die Absorption wesentlich stärker, weshalb sie in den Ramanexperimenten nicht verwendet wurden. Die Absorption kann bei Verwendung der 465.8 nm-Linie weiter verringert werden. Da sich die geringe Absorption bei 476.5 nm bei den Ramanmessungen nicht störend bemerkbar machte, und die Intensitäten der kurzwelligen Laserlinien wesentlich geringer sind, wurden die Untersuchungen mit der 476.5 nm-Linie durchgeführt. Bei der Anregung der Fluoreszenz zeigte es sich, daß die geringe Absorption bei 476.5 nm genügte, um eine intensive Emission zu erhalten.

Der im paramagnetischen Zustand sechsfach entartete Grundzustandsterm 6S der Symmetrie $A_{1g}(^6S)$ spaltet im antiferromagnetischen Austauschfeld in 6 Niveaus auf, je drei der Symmetrie $D\Gamma_{3g}$ und $D\Gamma_{4g}$. Γ_{3g} und Γ_{4g} sind zweideutige irreduzible Darstellungen von C_{2h} in der Bezeichnung nach /64/, die wegen des halbzahlgigen Spins auftreten. Der Grundzustand der Mn^{++} -Ionen des $\bar{1}$ -Gitters ist demnach ein $S=5/2$, $D\Gamma_{3g}$ -Zustand und ein $S=5/2$, $D\Gamma_{4g}$ -Zustand für das andere Untergitter, siehe auch /67/.

Der erste angeregte Zustand, $T_{1g}({}^4G)$ in der Lagegruppe O_h , ist bei Vernachlässigung der Spin-Bahn-Kopplung 12-fach entartet. Bei Berücksichtigung dieser Kopplung und des tatsächlichen Kristallfeldes, spaltet dieser Zustand in 12 Niveaus auf, siehe /16/, je sechs der Symmetrien $D\Gamma_{3g}$ und $D\Gamma_{4g}$ in $D_{2h}(C_{2h})$. Obwohl die Spinquantenzahl wegen der Spin-Bahn-Kopplung keine gute Quantenzahl ist, kann das niedrigste Niveau des $T_{1g}({}^4G)$ -Zustandes im wesentlichen durch $S^Z=\pm 3/2$ für die beiden Untergitter klassifiziert werden /16/.

1.2. Übergänge zwischen $A_{1g}({}^6S)$ und $T_{1g}({}^4G)$

Zwischen den Zuständen der Terme A_{1g} und T_{1g} sind Übergänge zwischen Niveaus gleicher und verschiedener Symmetrie möglich. Darauf wird später noch einmal eingegangen. Die Zustände der beiden Terme haben gleiche Parität. Deshalb sind elektrische Dipolübergänge verboten. Außerdem sind die Übergänge in erster Näherung spinverboten ($S=\pm 5/2 \rightarrow S=\pm 3/2$). Dieses Verbot gilt wegen der Spin-Bahn-Kopplung jedoch nicht streng.

Die eingangs erwähnte, von Greene, Sell et al. /75/ beobachtete Struktur im Absorptionsspektrum zwischen 18 400 und 18 500 cm^{-1} hat ihren Ursprung in Übergängen von $A_{1g}({}^6S)$ nach $T_{1g}({}^4G)$. Die Linien sind in Tabelle 9 aufgeführt.

Tabelle 9. Übergänge zwischen $A_{1g}({}^6S)$ und $T_{1g}({}^4G)$ nach /75/.

Linie und Polarisation	Energie [cm^{-1}]	T [K]	HWB [cm^{-1}]
M1 σ	18418.4 $\pm$ 0.1	4.2	0.5
M2 σ	18435.3 $\pm$ 0.1	4.2	0.5
E1 π	18460.0 $\pm$ 0.2	4.2	12.0
E1 σ	18475.4 $\pm$ 0.2	4.2	3.4
E2 σ	18483.6 $\pm$ 0.3	4.2	5.0
H1 σ	18369.1 $\pm$ 0.5	25	16.0

M bezeichnet dabei einen magnetischen, E einen elektrischen Dipolübergang und H ein hot-band.

In /16/ werden die M-Linien Exzitonen- und die E- und H-Linien Exziton-Magnon-Übergängen zugeordnet.

Die Identifizierung des Charakters eines Übergangs erfolgt durch Vergleich der Polarisation der betreffenden Linie mit den Auswahlregeln für Einphotonenprozesse nach Tabelle 10. Aus dieser Tabelle können auch die Symmetrien der Übergänge entnommen werden.

Tabelle 10. Auswahlregeln für Absorption und Emission in $D_{4h}^{14}(D_{2h}^{12})$

Dipol-Übergang		Polarisation	Symmetrie
magnetisch	μ_z	$\parallel c$ (σ)	DB_{1g}
	μ_x, μ_y	$\perp c$ (π und α)	DB_{2g}, DB_{3g}
elektrisch	p_z	$\parallel c$ (π)	DB_{1u}
	p_x, p_y	$\perp c$ (σ und α)	DB_{2u}, DB_{3u}

Die Polarisationen sind dabei folgendermaßen definiert:

$\sigma(Elc, H\parallel c)$, $\pi(E\parallel c, H\perp c)$ und $\alpha(Elc, H\perp c)$.

1.3. Exzitonen und Exziton-Magnon-Zustände von KnF_2

Exzitonen sind Zustände des gesamten Kristalls, wie Phononen oder Magnonen, die sich aus phasenfaktorgewichteten, gekoppelten Elektron-Loch-Zuständen der einzelnen Ionen zusammensetzen, siehe z.B. auch die entsprechende Gleichung für Magnonen (1.9). Die Exzitonenergie ist abhängig vom Wellenvektor $\vec{k}$.

Es sind zwei Grenzfälle zu unterscheiden. Beim sogenannten Wannier-Exziton ist der Abstand zwischen dem angeregten Elektron und dem bei der Anregung entstehenden Loch groß gegen den Gitterabstand. Diesem Grenzfall kommen Halbleiter nahe, wo das Elektron vom Valenzband in das Leitungsband angehoben wird, in dem es sich relativ frei bewegen kann. Der andere Grenzfall ist

der des Frenkel-Exzitons, mit einem Abstand zwischen Elektron und Loch in der Größenordnung des Gitterabstandes. Dieser Grenzfall kann zur Beschreibung von Molekülkristallen herangezogen werden, wo kein Elektronenaustausch zwischen verschiedenen Molekülen stattfindet. Von Davydov /81/ wurde eine allgemeine Theorie der Exzitonen in Molekülkristallen aufgestellt. Wegen der allgemeinen Exzitonentheorie wird auf das Buch von Knox /82/ verwiesen.

Das Schema des Frenkel-Exzitons wird in /16/ auch auf MnF_2 angewandt, weil die elektronische Anregung in einer inneren Schale ($3d$) der Mn^{++} -Ionen stattfindet und das angeregte Elektron in der Nähe des Rumpfes lokalisiert bleibt.

Da die verschiedenen Niveaus des A_{1g} - und T_{1g} -Terms $D\Gamma_{3g}$ - oder $D\Gamma_{4g}$ -Symmetrie in $D_{2h}(C_{2h})$ haben, sind Übergänge zwischen Zuständen gleicher und verschiedener Symmetrie möglich. Loudon /67/ bezeichnet sie als Übergänge zwischen "like"- und "unlike"-Zuständen. Die Exzitonen, die sich aus diesen beiden Ionenübergängen zusammensetzen, unterscheiden sich in ihrem Symmetrieverhalten in der BZ. Loudon untersucht die beiden Möglichkeiten und kommt zu folgenden Schlüssen /67/:

Die Exzitonen, die sich aus Einionenübergängen zwischen "like"-Zuständen zusammensetzen, sind in der Mitte der BZ Davydov-aufgespalten. Die Ursache dafür ist die Wechselwirkung zwischen Ionen auf verschiedenen Untergittern. Sie haben in der Mitte der BZ die Symmetrien DA_g und DB_{1g} in $D_{4h}(D_{2h})^{14}$ und sind eine symmetrische bzw. antisymmetrische Linearkombination von untergitterbezogenen Funktionen, ähnlich den Magnonen $|\vec{k}\rangle$ und $|\vec{k}\rangle$. Nach Tabelle 10 ist das DB_{1g} -Exziton magnetisch dipolaktiv und kann in σ -Polarisation beobachtet werden. Aus diesem Grund ordnen Greene, Sell et al. /16/, /76/ die $M\sigma$ -Linien in Tabelle 9 "like"-Exzitonen der Symmetrie DB_{1g} zu.

Durch ein äußeres statisches Magnetfeld in (001)-Richtung wird die Symmetrie der Raumgruppe erniedrigt, - der unitäre Normalteiler geht von D_{2h}^{12} in C_{2h}^1 über -, so daß auch das DA_g -Exziton magnetisch dipolaktiv in σ -Polarisation wird. Die entsprechenden Untersuchungen von MnF_2 , /76/, ergeben jedoch nur eine Aufspaltung der beiden Linien $M1\sigma$ und $M2\sigma$ in zwei Komponenten,

die von den Beiträgen der beiden Untergitter herrühren. Ein Anhaltspunkt für die Davydov-Aufspaltung konnte nicht gefunden werden, so daß in /76/ und /67/ der Schluß gezogen wird, daß die Wechselwirkung zwischen Ionen auf verschiedenen Untergittern verschwindend klein ist. Das hat zur Folge, daß die untergitterbezogenen Exzitonen Eigenzustände des Hamiltonoperators werden. Als Hauptgrund für dieses experimentelle Ergebnis sieht Loudon /67/ an, daß sich die Komponente des Spins um ± 2 ändern müßte, um die Anregung von einem Untergitter auf das andere zu übertragen, was durch Austauschwechselwirkung nicht erfolgen kann. Die Messungen im Magnetfeld wurden durch die Untersuchung der Exzitonen $M1\sigma$ und $M2\sigma$ unter uniaxialem Druck durch Dietz et al. /77/ und /83/ unterstützt. Die Exzitonen, die sich aus Einionenübergängen zwischen "unlike"-Zuständen zusammensetzen, sind in der Mitte der BZ entartet. Sie haben dort die Symmetrie DB_{2g} oder DB_{3g} in $D_{4h}^{14}(D_{2h}^{12})$. Die Spinwellen sind ein Spezialfall dieser Exzitonen, da die Übergänge zwischen Niveaus im $A_{1g}(^6S)$ -Sextett stattfinden. Da Exzitonen und Magnonen mit Phasenfaktoren gewichtete Anregungen einzelner Ionen sind, kann man die Anregungen wie in Abb. 56 und Abb. 57 schematisch als Einionenanregungen darstellen.

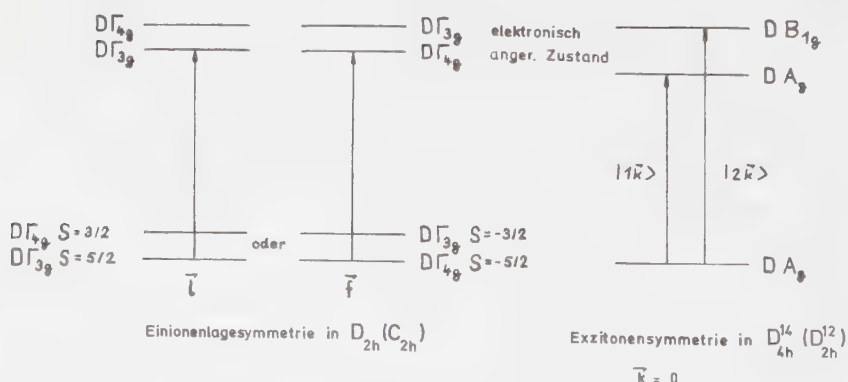


Abb. 56. Schematische Darstellung der Anregung von "like"-Exzitonen in Form von Einionen-Anregungen und als Anregung im $\vec{k}$ -Raum.

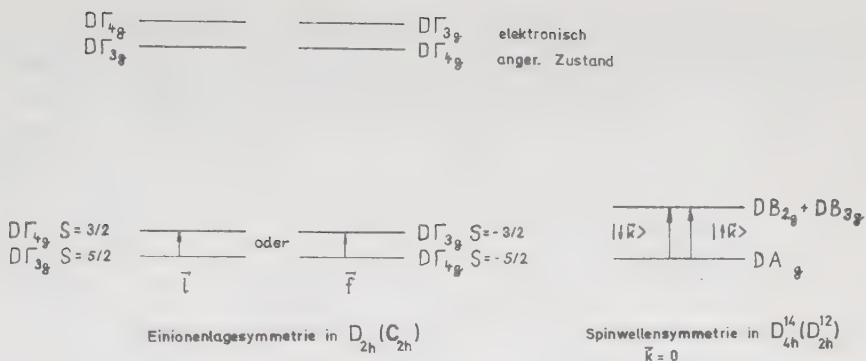


Abb. 57. Schematische Darstellung der Spinwellenanregung in Form von Einionen-Anregungen und als Anregung im $\vec{k}$ -Raum.

len. Bei der Anregung dieser Zustände durch Absorption von Photonen regt ein Photon ein Ion an, das aufgrund der Wechselwirkung innerhalb eines Untergitters und zwischen den Untergittern die Anregungsenergie an beide Untergitter weitergibt.

Bei der Zweizentrenanregung, die zu den bereits diskutierten Zweimagnonenzuständen, zu Exziton-Magnon- und zu Exziton-Exziton-Zuständen, /84/, führt, regt ein Photon dagegen simultan zwei benachbarte Ionen an. Die Anregungsenergie wird dann wie oben durch die verschiedenen Wechselwirkungen auf den gesamten Kristall verteilt.

Zur mikroskopischen Erklärung der Zweizentrenanregung gibt es im wesentlichen drei verschiedene Theorien, auf die bereits in I.3. hingewiesen wurde, siehe auch Loudon /67/. Die Auswahlregeln für die verschiedenen Übergänge sind unabhängig vom Kopplungsmechanismus. Die Wechselwirkung hat dagegen großen Einfluß auf die Linienprofile.

Nach den experimentellen Befunden sind die Zweizentrenübergänge elektrisch dipolaktiv, so daß sich die z-Komponente des Gesamt-

spins des Paares nicht ändert. Deshalb sind in Absorption zwei Arten von Spinwellenseitenbanden möglich, die in der Abb. 58 in Form von Einionenübergängen schematisch dargestellt sind.

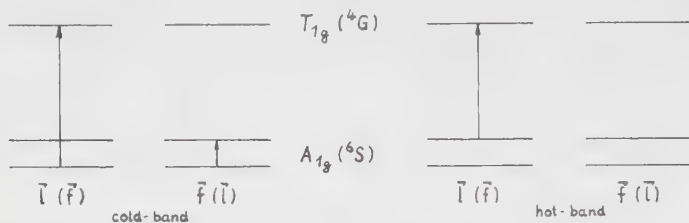


Abb. 58. Die zwei Arten von Spinwellenseitenbanden in Absorption im Schema der Einionenübergänge der Abbildungen 56 und 57.

Beim cold-band werden Exziton und Magnon simultan erzeugt, während beim hot-band ein Magnon mit dem Photon vernichtet und ein Exziton erzeugt wird. Da im letzteren Fall ein besetzter Spinwellenzustand benötigt wird, ist die entsprechende Bande temperaturabhängig. Da für $\vec{k}$ -Werte auf dem Rand der BZ die Spinwellen im wesentlichen Anregungen eines Untergitters sind, siehe (2.15), ist für diese Wellenvektoren das hot-band eine Anregung nur eines Untergitters. Im Emissionsprozeß kehren sich die Pfeile in Abb. 58 um und das hot-band in Absorption wird zum cold-band in Emission.

Bei den hot-bands in Absorption und den cold-bands in Emission koexistieren Magnon und Exziton nicht zeitlich, so daß sie nicht wechselwirken. Deshalb eignet sich besonders die Untersuchung der Spinwellenseitenbanden in Emission dazu, Rückschlüsse auf die Exzitonendispersion zu ziehen, siehe unten. Unter Zugrundelegung des Austausch-Mechanismus als wesentliche Ursache für das Auftreten elektrisch dipolaktiver Spinwellenseitenbanden zu magnetisch dipolaktiven Exzitonen und Beschränkung auf die Wechselwirkung zwischen den ersten drei nächsten

Nachbarn, leiten Meltzer et al. /78/ Ausdrücke für die Übergangsmomente für Seitenbanden zu "like"- und "unlike"-Exzitonen her, siehe auch /88/:

Für hot-band Emission und cold-band Absorption und "like"-Exzitonen:

$$\begin{aligned} \sigma\text{-Pol. } |M^{\sigma}(\vec{k})|^2 &= \left\{ P_Z(2) \cos^2(k_{x2} \frac{a}{2}) \cos^2(k_{y2} \frac{a}{2}) \sin^2(k_{z2} \frac{c}{2}) + \right. \\ &\quad + P_A(2) \sin^2(k_{x2} \frac{a}{2}) \sin^2(k_{y2} \frac{a}{2}) \sin^2(k_{z2} \frac{c}{2}) \left. \right\} u_{\vec{k}}^2 + \\ &\quad + P^{\sigma}(1) \sin^2(k_{z2} \frac{c}{2}) v_{\vec{k}}^2 \\ \pi\text{-Pol. } |M^{\pi}(\vec{k})|^2 &= P_X(2) \sin^2(k_{x2} \frac{a}{2}) \cos^2(k_{y2} \frac{a}{2}) \cos^2(k_{z2} \frac{c}{2}) u_{\vec{k}}^2 + \\ &\quad + P^{\pi}(3) [\sin^2(k_{xa}) + \sin^2(k_{ya})] v_{\vec{k}}^2 \end{aligned} \quad (III.1)$$

Die Funktionen $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$ sind die in I.2. eingeführten Kopplungsgrößen für Spinanregungen der einzelnen Untergitter und die $P(j)$ Funktionen der Übergangsmomente für ein Paar von j -ten Nachbarn. Für die entsprechenden Seitenbanden zu "unlike"-Exzitonen vertauschen sich einfach die Polarisationen σ und π , wo sie in (III.1) auftreten.

Für cold-band Emission und hot-band Absorption hat man in (III.1) $u(\vec{k})$ und $v(\vec{k})$ zu vertauschen.

Bei Vernachlässigung der Wechselwirkung zwischen Exziton und Magnon ist die gesamte Übergangswahrscheinlichkeit in Absorption:

$$\begin{aligned} W_c^{\sigma}(\omega) &= C \sum_{\vec{k}} |M^{\sigma}(\vec{k})|^2 \delta(\hbar\omega - E_{\vec{k}}^{\text{ex}} - E_{\vec{k}}^{\text{mag}}) \\ W_h^{\sigma}(\omega) &= C \sum_{\vec{k}} |M^{\sigma}(\vec{k})|^2 n_{\vec{k}}(T) \delta(\hbar\omega - E_{\vec{k}}^{\text{ex}} + E_{\vec{k}}^{\text{mag}}) \end{aligned} \quad (III.2)$$

für cold-bands bzw. hot-bands. $n_{\vec{k}}(T)$ ist die mittlere Besetzungszahl des $\vec{k}$ -ten Spinwellenzustandes. Für den Emissionsprozeß ändert sich das Vorzeichen von $E_{\vec{k}}^{\text{mag}}$.

Nimmt man zunächst $E_{\vec{k}}^{\text{ex}}$ unabhängig von $\vec{k}$ an, dann entnimmt man aus (III.2), daß die Übergangswahrscheinlichkeit dort maximal werden kann, wo die Spinwellenzustandsdichte Maxima besitzt, d.h. auf dem Rand der BZ. Nach Gleichung (2.11) und (2.12) verschwindet $v(\vec{k})$ bei diesen $\vec{k}$ -Werten, so daß nach (III.1) die kritischen Punkte X, Z und A zur hot-band Emission (cold-band

Absorption) beitragen. Die Zweizentrenanregung findet zwischen zweitnächsten Nachbarn statt.

Bei der cold-band Emission (hot-band Absorption) unterdrücken die Geometriefaktoren die Beiträge der kritischen Punkte. Das Experiment zeigt jedoch, daß man dennoch Banden beobachtet. In diesem Fall koppeln nächste oder drittnächste Nachbarn, also Ionen eines Untergitters, siehe auch Abb. 58.

Berücksichtigt man die Exzitonendispersion, so hat man die obige Diskussion dahingehend zu modifizieren, daß die beobachteten Banden Ausdruck der kombinierten Exziton-Magnon-Zustandsdichte sind. Mit Hilfe von (III.1) und (III.2) kann man die Profile berechnen und damit Aussagen über E_K^{ex} machen, wenn die Spinwellendispersion bekannt ist. Das ist bei MnF_2 der Fall. Greene, Sell et al. /16/ versuchten durch Simulation der Profile der Banden $E1\sigma$ und $E1\pi$ in Tabelle 9 die Dispersion des $M1\sigma$ -Exzitons zu bestimmen. Das ließ sich jedoch nicht konsistent durchführen.

Elliott und Thorpe /85/ wiesen darauf hin, daß durch die spezielle Art der Anregung eines Paares von Ionen in nächster Nachbarschaft Exziton und Magnon im allgemeinen stark miteinander wechselwirken, ähnlich wie die Spinwellen bei den Zweimagnonenprozessen, siehe auch Parkinson und Loudon /89/.

2. Experimentelle Anordnung

Die Fluoreszenz wurde in derselben Anordnung untersucht wie die Phononen und die Zweimagnonen-Zustände im Ramaneffekt, das heißt, die Wellenvektoren der anregenden und emittierten Photonen stehen senkrecht aufeinander. Die Versuchsanordnung wird durch die Streugeometrie, z.B. $z(yx)y$, angegeben, da sie die Anordnung eindeutig beschreibt. In der Tabelle 11 sind die Polarisationen angegeben, denen die Streugeometrien entsprechen. Die Experimente ergaben, daß die Polarisation des einfallenden Lichtes in $x(yy)z$ und $x(zy)z$ keinen Einfluß auf die Fluoreszenz hatte. Durch Vergleich der Spektren in den Streugeometrien 1, 2 und 3 (oder 4) mit den Auswahlregeln in Tabelle 10 können elektrische und magnetische Dipolübergänge eindeutig festgestellt werden.

Tabelle 11. Polarisation und Streugeometrie

Streugeometrie	Polarisation des Photons	
	einfallend	emittiert
1. $z(yx)y$	$\alpha:(E \perp c, H \perp c)$	$\sigma:(E \perp c, H \parallel c)$
2. $z(xz)y$	$\alpha:(E \perp c, H \perp c)$	$\pi:(E \parallel c, H \perp c)$
3. $x(yy)z$	$\sigma:(E \perp c, H \parallel c)$	$\alpha:(E \perp c, H \perp c)$
4. $x(zx)z$	$\pi:(E \parallel c, H \perp c)$	$\alpha:(E \perp c, H \perp c)$

Die Untersuchungen wurden alle mit der Laserlinie mit 476.5 nm durchgeführt. Die Laserleistung im Streuzentrum des Kristalls betrug etwa 150 mW. Die Spaltbreite betrug im allgemeinen etwa 2 cm^{-1} , in einigen Fällen auch 1 cm^{-1} .

Die Wellenzahlen wurden nicht absolut bestimmt. Mit der bekannten spektralen Lage des $M1\sigma$ -Exzitons, Tabelle 9, können die absoluten Energien der anderen Linien mit einem Fehler von etwa 3 cm^{-1} angegeben werden. Die Fehler der Energiedifferenzen hängen von den Linienbreiten ab und werden für schmale Linien zu etwa 0.5 cm^{-1} und für breite zu etwa 3 cm^{-1} geschätzt.

Die Intensitäten der in Emission beobachteten Übergänge hängen stark von den temperaturabhängigen und nichtstrahlenden Übergängen zu tiefer liegenden Störstellenniveaus ab. Außerdem zeigen Untersuchungen von Dietz et al. /86/, daß die Wahrscheinlichkeit dafür, daß Anregungsenergie an Störstellen übergeht, vom Wellenvektor abhängt. Deshalb wurden die Intensitäten der kristalleigenen Exzitonen- und Spinwellenseitenbanden nicht eingehend untersucht. Die Intensitäten der störstelleninduzierten Banden ändern sich über mehrere Größenordnungen, so daß Fehler durch Änderungen der experimentellen Bedingungen kaum ins Gewicht fallen, zumal die großen Änderungen in engen Temperaturintervallen stattfinden. Aus diesen Gründen wurden die Phononen bei diesen Untersuchungen nicht als Intensitätsstandard mit registriert.

Die angegebenen Intensitäten sind stets integrierte, die durch Ausplanimetrieren der Flächen unter den Linienprofilen oder

bei sehr schmalen Linien durch Berechnung der Fläche eines die Linie annähernden Dreiecks bestimmt wurden. Der Fehler in der Intensitätsbestimmung ist naturgemäß für die unterschiedlich starken Linien verschieden. Er wird im Durchschnitt auf etwa 25% geschätzt.

3. Ergebnisse der Untersuchung der Fluoreszenz

Die Fluoreszenzbande in σ - und π -Polarisation bei etwa 10K ist in Abb. 59 und 60 wiedergegeben. Das Maximum liegt in der Nähe von $17\,500\text{ cm}^{-1}$ und ist damit um etwa 2000 cm^{-1} gegenüber dem Maximum in Absorption verschoben. Die Intensität der Bande ändert sich sehr stark mit der Temperatur.

Dem Profil kommt keine große Aussagekraft zu, weil sich die spektrale Empfindlichkeit der Anordnung über den großen Wellenlängenbereich der Bande merklich ändert. Die integrierten Intensitäten können dennoch miteinander verglichen werden, weil sich die spektrale Lage relativ zu ihrer Halbwertsbreite nur wenig verschiebt. Hierauf wird in Punkt 3.2.5. eingegangen.

Bei LHe-Temperaturen treten auf der kurzwelligen Seite der Bande eine Anzahl von Linien auf, die zum Teil von der Probe abhängen und in verschiedenen Temperaturbereichen beobachtet werden können.

Die Anordnung der Linien und Banden innerhalb der durch ihr Temperaturverhalten unterschiedenen Gruppen ist für alle Gruppen ähnlich. Eine schmale Linie, deren HWB in der Größenordnung der spektralen Spaltbreite liegt, wird von einer intensiven Bande begleitet, die um etwa 50 cm^{-1} zu niedrigeren Energien verschoben ist. Auf diese wiederum folgt eine komplexe Struktur. Bei höheren Temperaturen tritt teilweise eine Bande auf, die um etwa 50 cm^{-1} zu höheren Energien bezüglich der schmalen Linie verschoben ist, und deren Intensität bei Temperaturerhöhung zunächst zunimmt.

Die verschiedenen Gruppen werden im folgenden getrennt diskutiert.

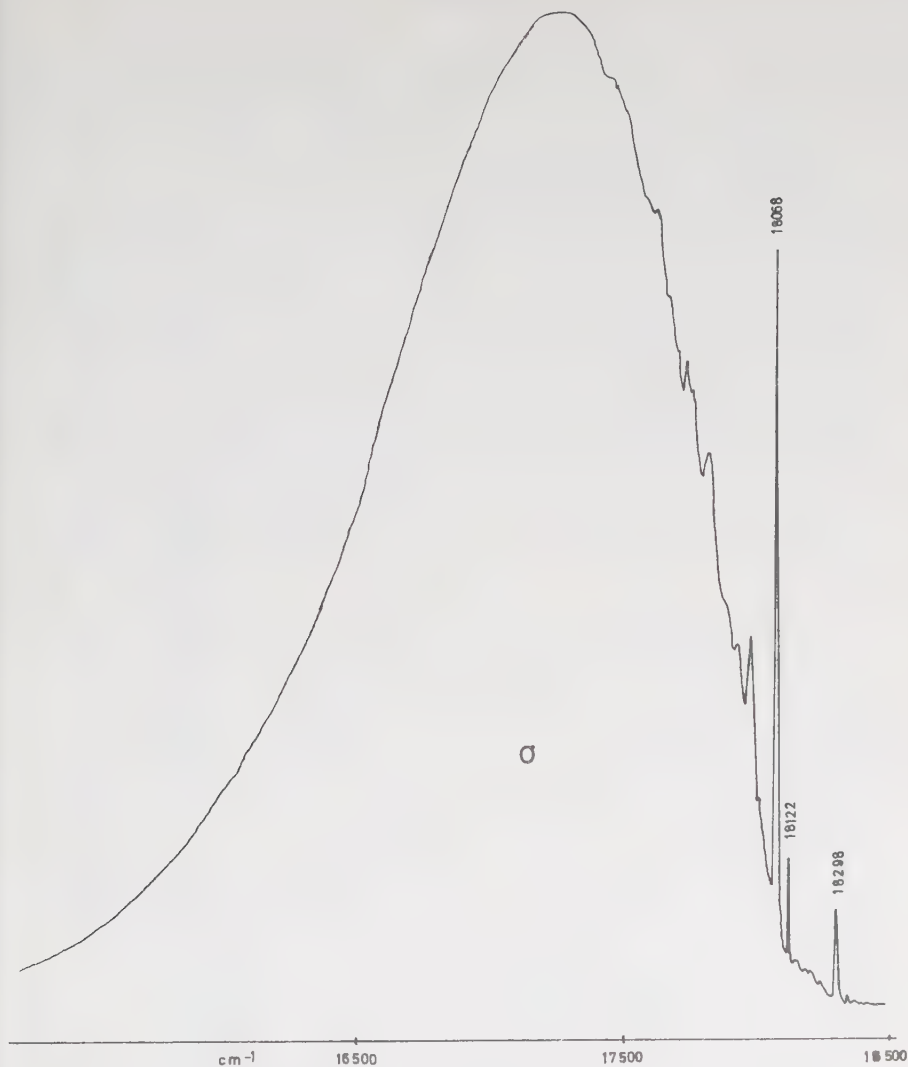


Abb. 59. σ -polarisierte Fluoreszenzbande um 17500 cm^{-1}
 mit störstelleninduzierter Struktur bei 10K.
 Anregung: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe.
 Spalt: 5 cm^{-1} . Maximumsintensität der Bande: ca. $2 \cdot 10^6 \text{ cps}$.

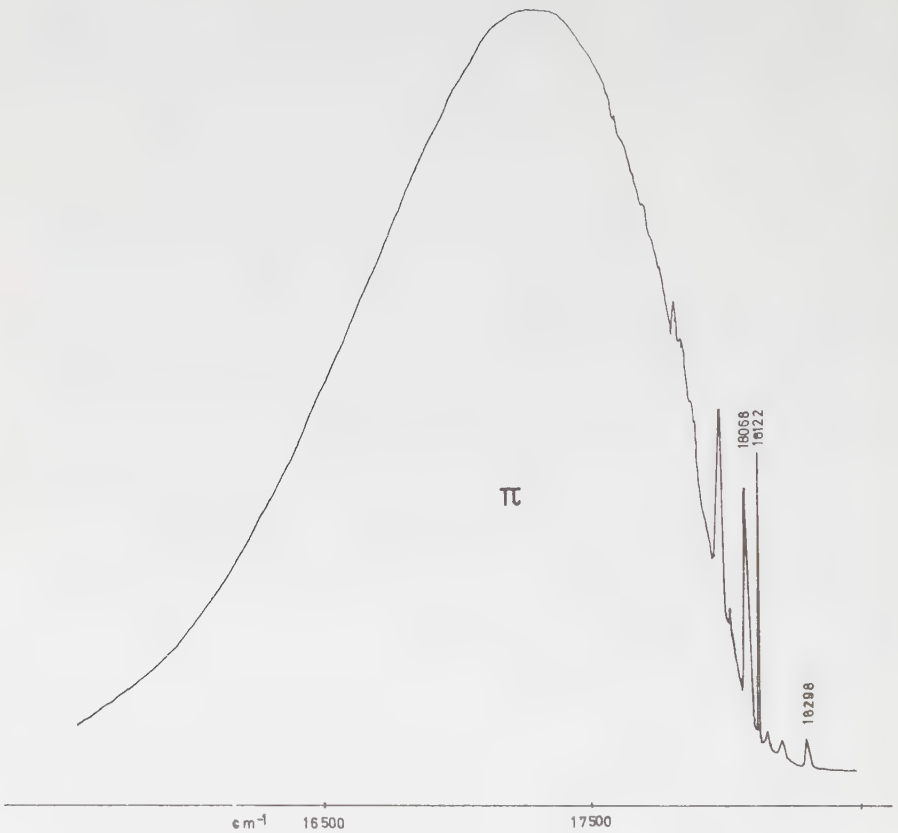


Abb. 60. π -polarisierte Fluoreszenzbande um 17500 cm^{-1}
mit störstelleninduzierter Struktur bei 12K.
Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 59.
Maximumsintensität der Bande: ca. $7 \cdot 10^5$ cps.

3.1. Die Linien zwischen 18 350 und 18 470 cm^{-1}

Diese Liniengruppe besteht aus insgesamt 6 Linien, nämlich aus zwei schwachen, schmalen, σ -polarisierten Linien bei 18 438 und 18 420 cm^{-1} und vier stärkeren, breiteren Banden, die teils in σ - und π -Polarisation, - 18 369 und 18 470 cm^{-1} -, und teils nur in π -Polarisation beobachtet werden, - 18 375 und 18 457 cm^{-1} -. In der Tabelle A8 sind einige temperaturabhängige Eigenschaften der Linien zusammengestellt. Die Intensitäten wurden auf die Intensität der stärksten Linie der Gruppe, 18 369 cm^{-1} , bezogen, die Energien als Differenzen gegenüber der Energie der 18 420 cm^{-1} -Linie angegeben.

Diese Gruppe ist im Vergleich zu den anderen Gruppen äußerst intensitätsschwach. Das Intensitätsverhältnis der stärksten Linie der Gruppe zur Bande bei 18 298 cm^{-1} , die bei tiefen Temperaturen die intensivste Linie der Fluoreszenz ist, beträgt etwa 1 zu 10^3 .

Nur drei Linien können bei 5K beobachtet werden, nämlich 18 420, 18 375 und 18 369 cm^{-1} . Die entsprechenden σ - und π -polarisierten Spektren sind in Abb. 61 und 62 wiedergegeben. Die Linie bei 18 420 cm^{-1} ist isoliert zu beobachten, während im Bereich von 18 365 bis 18 380 cm^{-1} in σ -Polarisation sechs Linien registriert werden. Bei der Untersuchung des Temperaturverhaltens stellt sich heraus, daß alle Linien, bis auf die bei 18 369 cm^{-1} , die bei 5K nur als Schulter zu beobachten ist, äußerst temperaturabhängig sind, Abb. 61. Bei 9K ist im wesentlichen nur die 18 369 cm^{-1} -Bande übriggeblieben. Aufgrund des weiteren Temperaturverhaltens wird diese Linie in eine Gruppe mit 18 420 cm^{-1} eingeordnet. Die Einordnung der anderen Linien in diese Gruppe erfolgte, weil sie mit 18 369 cm^{-1} bis etwa $0.7 \cdot T_N$ zu beobachten sind.

Die beiden Banden bei 18 470 und 18 457 cm^{-1} können aufgrund ihres Temperaturverhaltens eindeutig als hot-bands identifiziert werden.

Die schwächste Linie der Gruppe ist die bei 18 438 cm^{-1} , siehe Abb. 63. Wegen der geringen Intensität wurde sie nicht sehr eingehend untersucht. Es scheint jedoch so zu sein, daß die Intensität bis etwa 12K leicht zunimmt und dann etwa konstant bleibt.

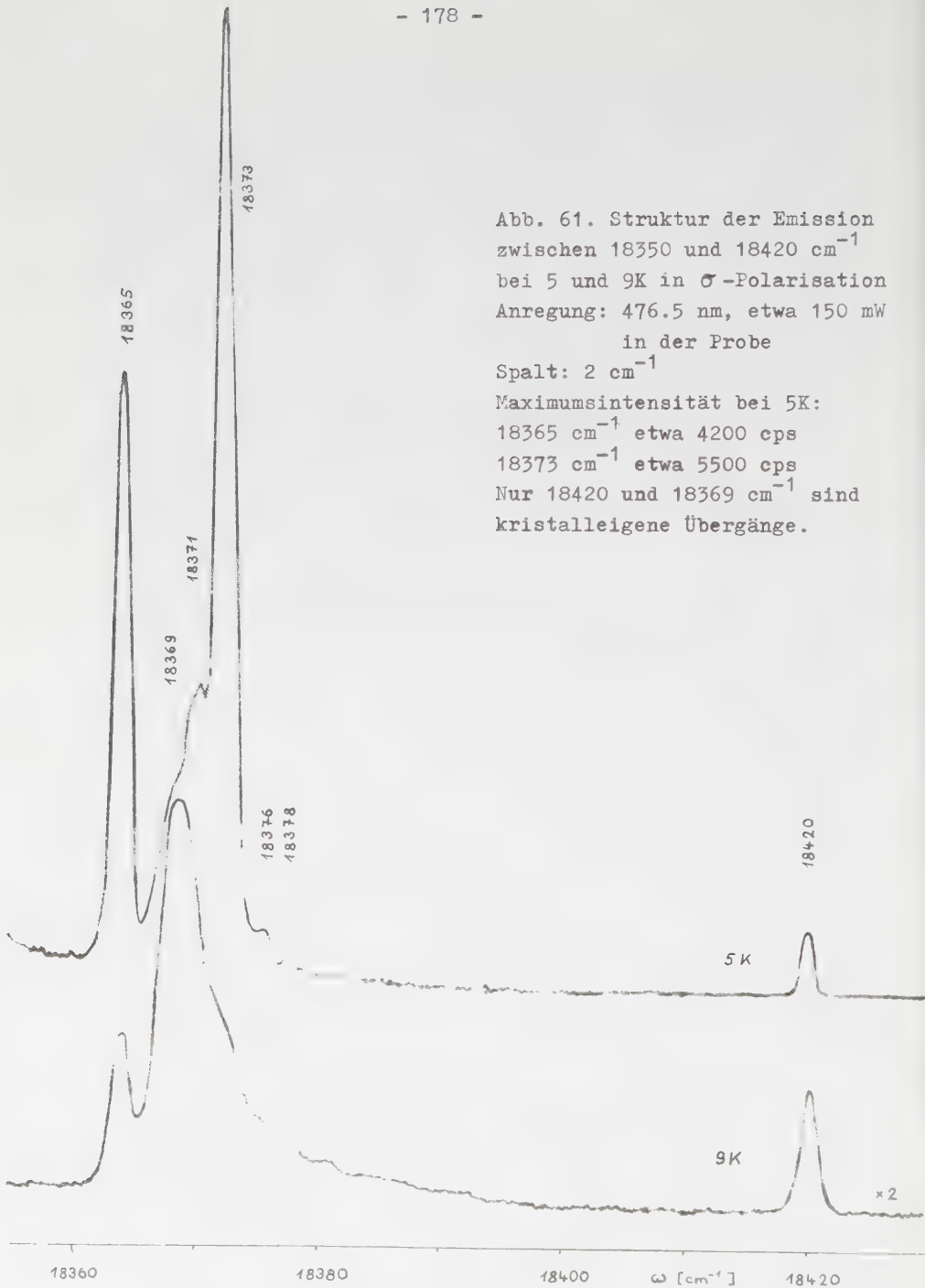


Abb. 61. Struktur der Emission
zwischen 18350 und 18420 cm^{-1}
bei 5 und 9K in σ -Polarisation
Anregung: 476.5 nm, etwa 150 mW
in der Probe

Spalt: 2 cm^{-1}

Maximumsintensität bei 5K:

18365 cm^{-1} etwa 4200 cps

18373 cm^{-1} etwa 5500 cps

Nur 18420 und 18369 cm^{-1} sind
kristalleigene Übergänge.

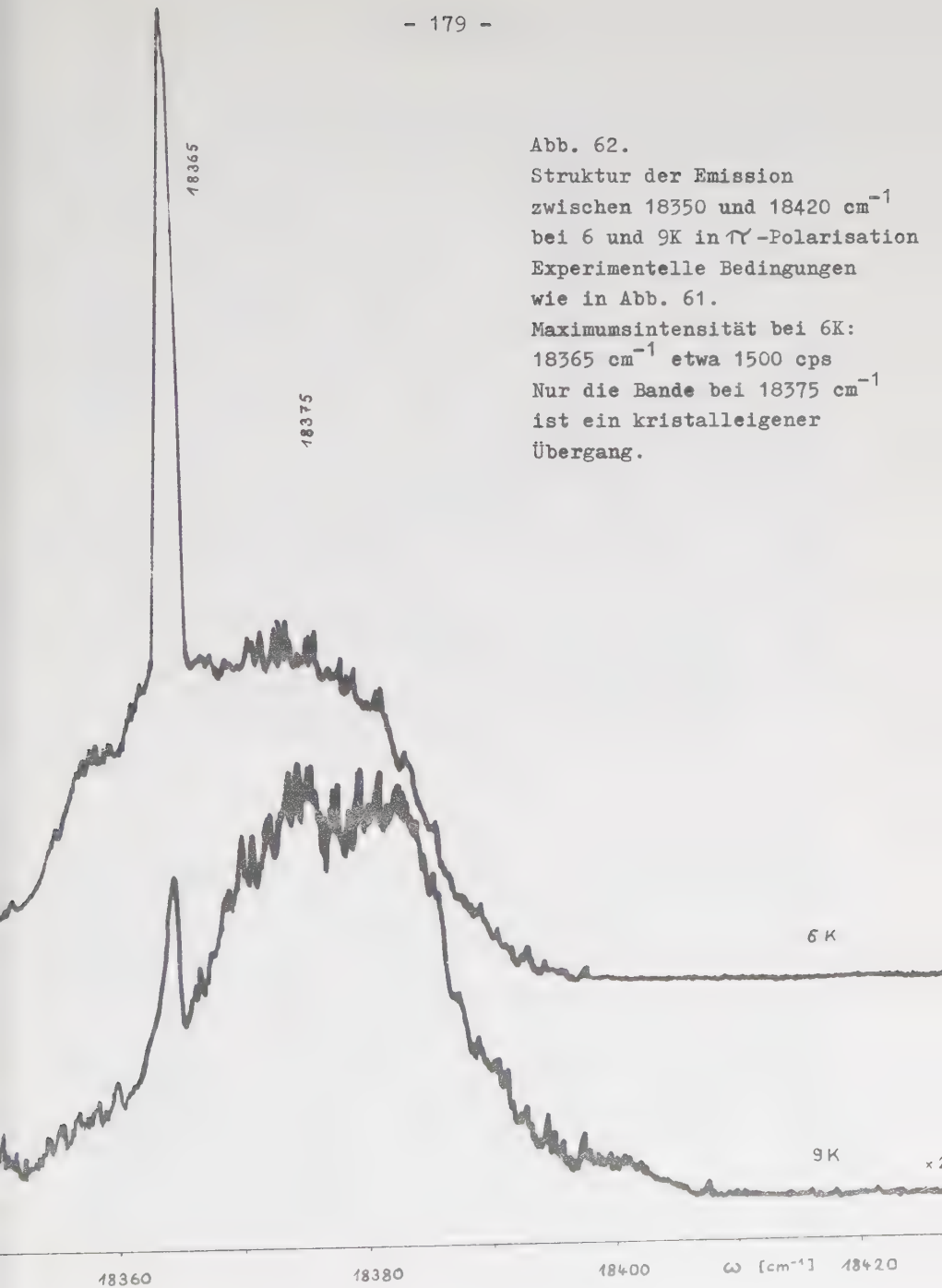


Abb. 62.

Struktur der Emission
zwischen 18350 und 18420 cm^{-1}
bei 6 und 9 K in π -Polarisation
Experimentelle Bedingungen
wie in Abb. 61.

Maximumsintensität bei 6 K :
 18365 cm^{-1} etwa 1500 cps
Nur die Bande bei 18375 cm^{-1}
ist ein kristalleigener
Übergang.

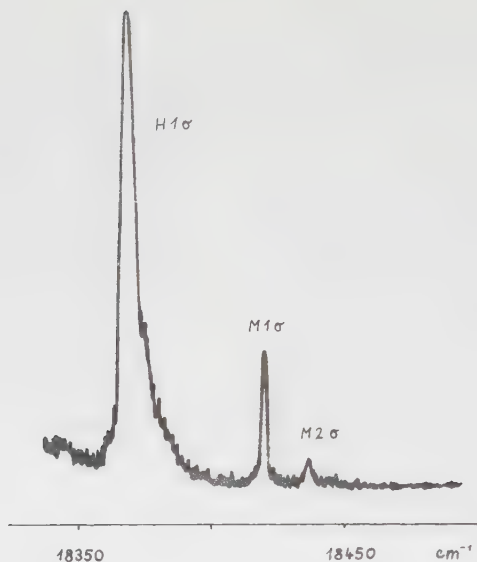


Abb. 63. Die kristalleigenen Übergänge zwischen 18350 und 18450 cm^{-1} in σ -Polarisation bei 17K.
Anregung: 476.5 nm, etwa 150 mW in der Probe
Spalt: 2 cm^{-1} . Maximumsintensität: H1 σ etwa 1700 cps.

Außer in ihrem Temperaturverhalten der Intensität unterscheiden sich die Linien auch in der HWB. Zwei Linien, 18 420 und 18 438 cm^{-1} , sind bei tiefen Temperaturen sehr schmal. Die HWB liegt in der Größenordnung der spektralen Spaltbreite. Die Halbwertsbreiten der anderen Banden liegen zwischen 5 cm^{-1} für 18 369 cm^{-1} und etwa 25 cm^{-1} für die hot-bands. Die beiden schmalen Linien 18 438 und 18 420 cm^{-1} werden nur in σ -Polarisation beobachtet. Nach Tabelle 10 entsprechen sie deshalb magnetischen Dipolübergängen. Diese Polarisations-eigenschaft, die spektrale Lage und die geringe HWB und Intensität sind Gründe, die beiden Linien dem M2 σ - bzw. M1 σ -Exziton aus Tabelle 9 zuzuordnen. Sie werden im folgenden entsprechend bezeichnet.

Dietz et al. /86/ beobachteten das $M1\sigma$ -Exziton bei 1.5K ebenfalls in Emission, konnten jedoch keine Linie bei $18\,438\text{ cm}^{-1}$ feststellen. Wie bereits erwähnt, deuten die Experimente zu der vorliegenden Arbeit darauf hin, daß die Intensität des $M2\sigma$ -Exzitons zunächst mit steigender Temperatur zunimmt, so daß Dietz et al. die $M2\sigma$ -Linie wegen zu geringer Intensität bei 1.5K nicht beobachten konnten.

In diesem Zusammenhang müssen einige Bemerkungen zu der Anregung des Kristalls gemacht werden. Die Anregung erfolgte quasi-monochromatisch in der Phononenseitenbande, siehe unten. Experimentell wurde festgestellt, daß die Emission unabhängig von der Polarisierung des anregenden Lichtes und von der Wellenlänge der Laserlinie ist, - es wurden auch Spektren mit den Laserlinien 488 nm und 514.5 nm angeregt. Nur durch die gleichzeitige Erzeugung mehrerer Quasiteilchen, wie Exzitonen, Magnonen und Phononen, kann der feste $\bar{k}$ - und ω -Wert aufgehoben und die Emission unabhängig von der anregenden Polarisationsrichtung werden. Da dabei kein Grund für eine Selektion von $M1\sigma$ und $M2\sigma$ einzusehen ist, wird man annehmen, daß beide Exzitonen etwa in dem Verhältnis angeregt werden, wie sie in Absorption beobachtet werden. Dort wird ein Intensitätsverhältnis von etwa 1:1 gemessen, Meltzer et al. /78/ und Sell et al. /16/. Oberhalb von 10K wird hier in Emission ein Intensitätsverhältnis von $M2\sigma$ zu $M1\sigma$ von etwa 1:7 beobachtet. Offensichtlich verliert das $M2\sigma$ -Exziton Anregungsenergie an das energetisch tiefer liegende $M1\sigma$ -Exziton. Allerdings ist die Relaxation innerhalb der Lebensdauer des $M2\sigma$ -Exzitons nicht vollständig.

Das beobachtete Temperaturverhalten kann man möglicherweise wie folgt erklären:

Neben dem Zerfall von $M2\sigma$ in $M1\sigma$ unter Erzeugung von akustischen Phononen verliert das $M2\sigma$ -Exziton bei tiefen Temperaturen Energie an Störstellenniveaus, die energetisch zwischen $M1\sigma$ und $M2\sigma$ liegen. Bei etwas erhöhten Temperaturen sind diese Niveaus thermisch angeregt, so daß als wesentlicher Relaxationsprozeß der Zerfall in $M1\sigma$ bleibt.

Nach den Untersuchungen von Dietz et al. /83/, /86/ haben das $M1\sigma$ - und $M2\sigma$ -Exziton vernachlässigbare Dispersion. Für $M1\sigma$

folgt dies auch aus den vorliegenden Messungen. Deshalb sind die Profile der Seitenbanden und ihre Energiedifferenzen zu den Exzitonenlinien eine Folge der Spinwellendispersion und eventuell der Wechselwirkung zwischen Magnon und Exziton. Hierauf stützt sich die folgende Diskussion.

Alle anderen Linien der Gruppe entsprechen nach ihrem Polarisationsverhalten elektrischen Dipolübergängen. Diese Eigenschaft, zusammen mit der spektralen Lage und dem Profil der Banden, legt den Schluß nahe, die Linien als Spinwellenseitenbanden zum Exziton $M1\sigma$ zu interpretieren. Es wird folgende Zuordnung getroffen.

Linie cm^{-1}	18470	18457	18375	18369
Zuordnung	$E1\sigma$	$E1\pi$	?	$H1\sigma$

Die Bezeichnung in der zweiten Zeile ist aus Tabelle 9 übernommen.

Die $H1\sigma$ -Linie, die in Emission ein cold-band ist, wurde bereits von Dietz et al. /86/ in Emission gefunden, während von der Beobachtung der anderen Linien in Emission hier zum ersten Mal berichtet wird. Der Grund dafür ist, daß zwei Linien hot-bands sind, $E1\sigma$ und $E1\pi$, während die Linie bei $18\,375\text{ cm}^{-1}$ bei tiefen Temperaturen von Störstellen-induzierten Übergängen überdeckt wird und erst bei höheren Temperaturen isoliert beobachtet werden kann.

Die Interpretation von $H1\sigma$ als Spinwellenseitenbande zum $M1\sigma$ -Exziton erfolgt aus folgenden Gründen: In III.2. wurde darauf hingewiesen, daß sich jeweils cold-band Absorption und hot-band Emission und die beiden anderen Prozesse bis auf ihr Temperaturverhalten entsprechen. In Absorption wird bei $18\,369\text{ cm}^{-1}$ ein hot-band beobachtet, Tabelle 9', an der Stelle, wo in Emission ebenfalls eine elektrische dipolaktive Bande auftritt. Der zweite Grund ist der Temperaturgang der Energiedifferenz gegenüber $M1\sigma$ und letztlich die gute Übereinstimmung zwischen Experiment und theoretischer Berechnung.

Dietz et al. /86/ beobachteten diese Linie in Emission bei 1.5K. Nach Abb. 61 wird die Bande bei dieser Temperatur von Störstellenbanden überdeckt. Die zitierten Autoren treffen die Zuord-

nung, indem sie die verschiedenen Lebensdauern von $H1\sigma$ und der restlichen Struktur ausnützen. Nach gepulster Anregung des Kristalls untersuchen sie die zu verschiedenen Zeiten emittierten Spektren.

Da $H1\sigma$ ein cold-band ist, wird die Spinwelle erst bei der Vernichtung des Exzitons erzeugt. Deshalb wechselwirken sie nicht miteinander, so daß man an dieser Bande bei bekannter Spinwellendispersion die Exzitonendispersion untersuchen kann. Nach (III.1) ist das Übergangsmoment bei σ -Polarisation für cold-bands zu "like"-Exzitonen in Emission durch $P\sigma(1)\sin^2(k_z c)u_k^2$ gegeben. Dietz et al. berechnen damit unter Annahme einer verschwindenden Exzitonendispersion das theoretische Spektrum und erhalten gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Da sie jedoch nicht angeben, welche Austauschparameter sie ansetzen, wurde diese einfache Rechnung noch einmal durchgeführt. Es wurden die Konstanten (II.3) verwendet, die die Maxima der beobachteten Zustandsdichte optimal beschreiben. Das Ergebnis dieser Rechnung ist in Abb. 64 mit dem Experiment bei 9K verglichen. Man erhält gute Übereinstimmung.

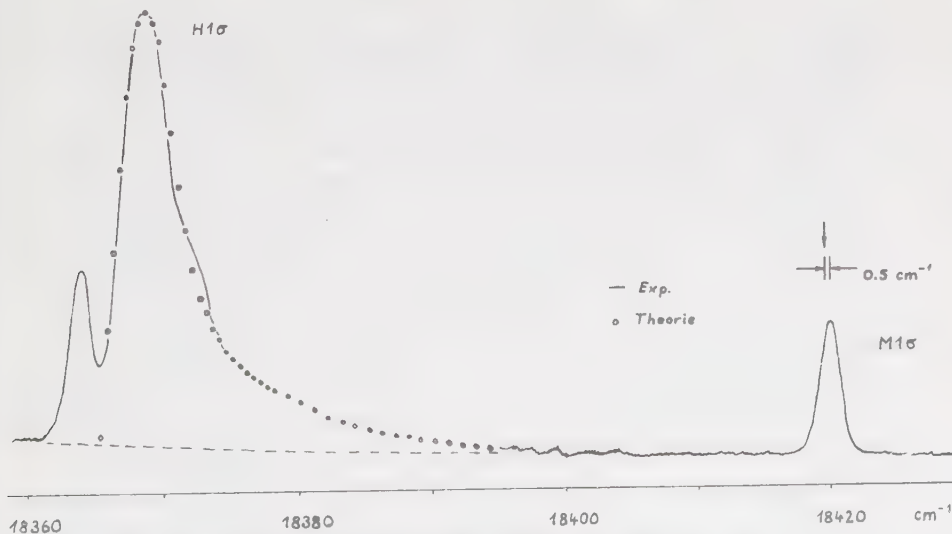


Abb. 64. Vergleich von Experiment und Theorie für die Spinwellenseitenbande $H1\sigma$. Die Differenz von 0.5 cm^{-1} zwischen berechneter und beobachteter Maximumsposition liegt innerhalb der Meßfehler. Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 61.

Diese Rechnung beweist, daß man $M1\sigma$ tatsächlich dispersionsfrei annehmen kann.

Der erwähnte dritte Grund für die Zuordnung ist die Temperaturabhängigkeit der Energiedifferenz von $H1\sigma$ und $M1\sigma$. Die $H1\sigma$ -Linie kann zusammen mit dem $M1\sigma$ -Exziton bis etwa 45K verfolgt werden, so daß bis zu dieser Temperatur die Energiedifferenz der beiden Linien festgestellt werden kann. In diesem Temperaturbereich nimmt die HWB der Exzitoneneinlinie von der Größenordnung der spektralen Spaltbreite bis auf 10 cm^{-1} zu, wobei dieser Wert jedoch aus Intensitätsgründen mit einem 5 cm^{-1} -Spalt gemessen wurde. Bei höheren Temperaturen wird die Bestimmung der Exzitoneneinergie zu ungenau, um eine Energiedifferenz festzustellen, zumal sich die Fluoreszenzbande bei Temperaturerhöhung zu höheren Energien verschiebt und somit der untersuchte Spektralbereich in die Flanke der Fluoreszenzbande gerät. Die Energie von $H1\sigma$ ist unter Vernachlässigung der Wechselwirkung durch folgende Gleichung bestimmt:

$$\omega_{\vec{k}}^{H1\sigma}(T) = \omega_{\vec{k}}^{M1\sigma}(T) - h_{\vec{k}}(T)W(\vec{k}).$$

Da man $M1\sigma$ als dispersionsfrei annehmen kann, kann man für $\omega_{\vec{k}}^{M1\sigma}(T)$ den Energiewert der $M1\sigma$ -Linie einsetzen und erhält somit in einfacher Weise den Verlauf von $h_{\vec{k}}(T)$.

Die Energiedifferenz beträgt bei $T \rightarrow 0\text{K}$ etwa 51 cm^{-1} und nimmt mit höherer Temperatur ab. Obwohl durch das Übergangsmoment $P^{\sigma}(1)\sin^2(k_z c)u^2(\vec{k})$ die kritischen Punkte der BZ unterdrückt werden, kann man doch behaupten, daß die Spinwellen $\vec{k}$ -Vektoren aus der Nähe des Randes der BZ haben. Auf diese kann die Renormierung aus I.2.5.2. angewendet werden. In Abb. 65 ist der Temperaturgang der Meßwerte mit der entsprechenden Kurve für den M-Punkt verglichen. Die Übereinstimmung ist innerhalb der Meßgenauigkeit gut, so daß die Interpretation in sich konsistent ist und auch den Temperaturgang der Energiedifferenz liefert.

Es ist interessant, den Temperaturverlauf der HWB dieser Bande zu verfolgen und mit den entsprechenden Werten der Zweimagnonenbanden zu vergleichen. Die HWB dieser Banden sind ein Effekt der endlichen Lebensdauer der Spinwellen und einer zusätzlichen

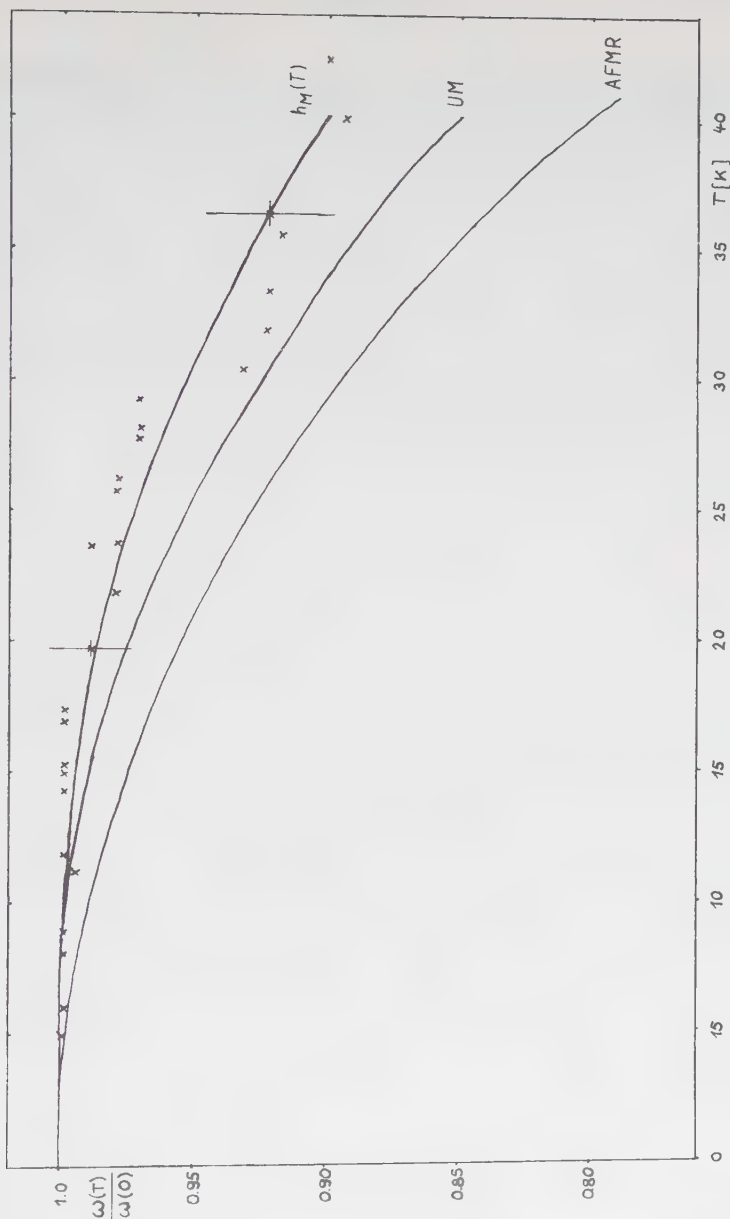


Abb. 65. Temperaturgang der Energiedifferenz zwischen $M1\sigma$ und $H1\sigma$, verglichen mit der Energienormierung $h_M(T)$, mit der Untergittermagnetisierung UM in Spinwellennäherung und mit der AFMR-Frequenz nach /87/.

Wechselwirkung der zwei im Ramaneffekt in nächster Nachbarschaft erzeugten Spinwellen. Die HWB der in Emission beobachteten Bande $H1\sigma$ ist dagegen im wesentlichen eine Folge der endlichen Lebensdauer der Magnonen und der Dämpfung durch Wechselwirkung mit Störstellen. Solange die HWB des $M1\sigma$ -Exzitons jedoch in der Größenordnung der spektralen Spaltbreite liegt, bis etwa 30K, wird man diese vernachlässigen können, so daß die HWB von $H1\sigma$ in diesem Temperaturbereich ein oberes Maß für die Lebensdauer der Spinwellen ist. Die Rechnung liefert für die DB_{1g} -Zweimagnonenbande in Übereinstimmung mit dem Experiment bei $T \rightarrow 0K$ und für 2 cm^{-1} Spaltbreite eine HWB von etwa 4 cm^{-1} mit und ohne Wechselwirkung der Spinwellen. Die

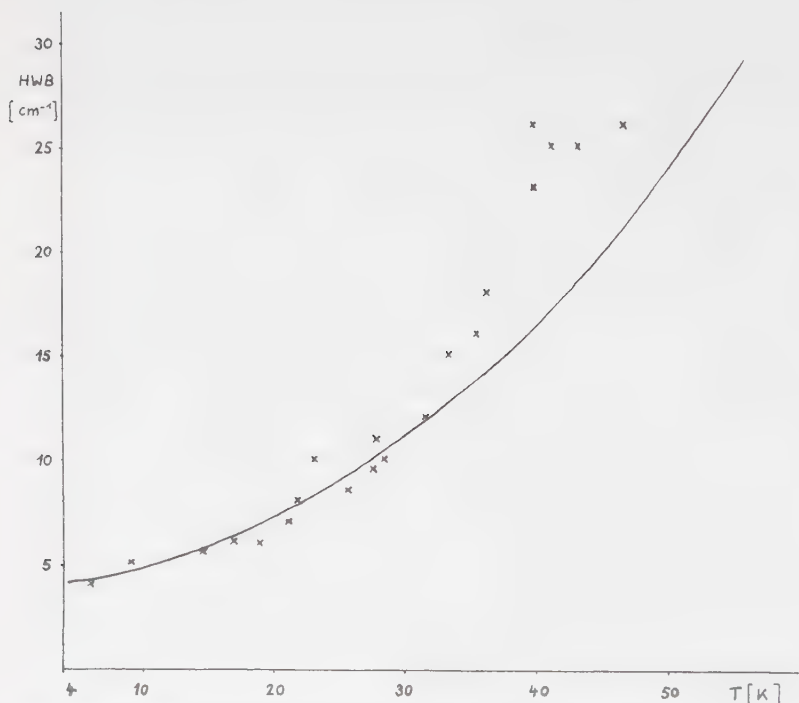


Abb. 66. Vergleich der Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreiten der Spinwellenseitenbande $H1\sigma$ (x) und der DB_{1g} -Zweimagnonenbande (ausgezogene Kurve nach Abb. 50).

Wechselwirkung und die Dämpfung haben bei dieser Temperatur also vernachlässigbaren Einfluß auf die beobachtete Bande. Auch die $H1\sigma$ -Bande läßt sich allein aus der Spinwellendispersion in Übereinstimmung mit dem Experiment berechnen. Die HWB beträgt bei 9K, wo die Störstellenbanden verschwunden sind, etwa 4 cm^{-1} bei 2 cm^{-1} Spaltbreite.

In der Abb. 66 sind die Halbwertsbreiten der beiden Banden in ihrem Temperaturverhalten miteinander verglichen. Bis 35K ist die Übereinstimmung gut, so daß man nach diesen Messungen annehmen kann, daß die Halbwertsbreiten beider Banden die gleiche Ursache in der Dämpfung der Spinwellen haben. Bei höheren Temperaturen nimmt die HWB von $H1\sigma$ wesentlich stärker zu. Der Vergleich mit Tabelle A8 zeigt, daß dies offensichtlich mit der Ursache für die Dämpfung des $M1\sigma$ -Exzitons zusammenhängt.

Die beiden Linien bei $18\,457 \text{ cm}^{-1}$, siehe Abb. 67, und $18\,470 \text{ cm}^{-1}$, Abb. 68, werden hier zum ersten Mal in Emission beobachtet. Aus dem Polarisationsverhalten folgt, daß sie beide elektrische Dipollinien sind. Nach Tabelle 9 beobachtet man in Absorption im selben Gebiet des Spektrums zwei cold-bands mit demselben Polarisationsverhalten. Da die beiden hier beobachteten Linien hot-bands sind, können sie den Übergängen $E1\pi$ und $E1\sigma$ aus Tabelle 9 in Emission zugeordnet werden. Bei beiden Banden spielt die Wechselwirkung von Exziton und Magnon eine Rolle, siehe Abb. 58, so daß aus der Energieverschiebung bezüglich $M1\sigma$ nicht auf die Energie des Magnons geschlossen werden kann. Da $E1\pi$ und $E1\sigma$ außerdem erst oberhalb von 14K bzw. 20K nachzuweisen sind, kann der Temperaturgang der Banden nur ungefähr bestimmt werden.

Die Energie dieser Banden ist folgendermaßen gegeben:

$$\omega_{\vec{k}}^{E1}(T) = \omega_{\vec{k}}^{M1\sigma}(T) + \omega_{\vec{k}}^{\text{int}}(T) + h_{\vec{k}}(T)W(\vec{k}) .$$

$\omega_{\vec{k}}^{\text{int}}(T)$ ist die Wechselwirkungsenergie zwischen Exziton und Magnon.

Nach (II.2) trägt zur $E1\pi$ -Bande im wesentlichen der Punkt X bei, so daß $W(\vec{k}) = 49.0 \text{ cm}^{-1}$. Nimmt man $h_{\vec{k}}(15) \approx 0.99$, was etwa der Renormierung für die Energie oder Untergittermagnet-

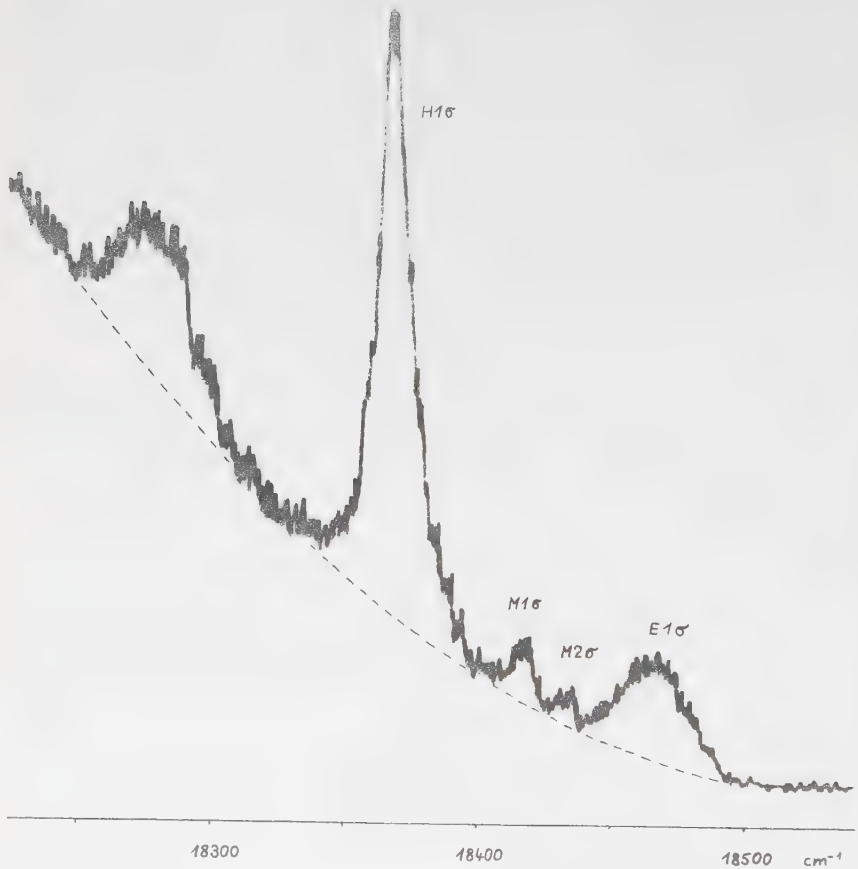


Abb. 67. Struktur der Emission um 18400 cm^{-1} bei 32K in σ -Polarisation mit den beiden Exzitonen $M1\sigma$ und $M2\sigma$ und zwei Spinwellenseitenbanden $H1\sigma$ und $E1\sigma$. Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 61. Maximumsintensität von $H1\sigma$ etwa 1000 cps. Die Struktur befindet sich in der Flanke (---) der Fluoreszenzbande aus Abb. 59.

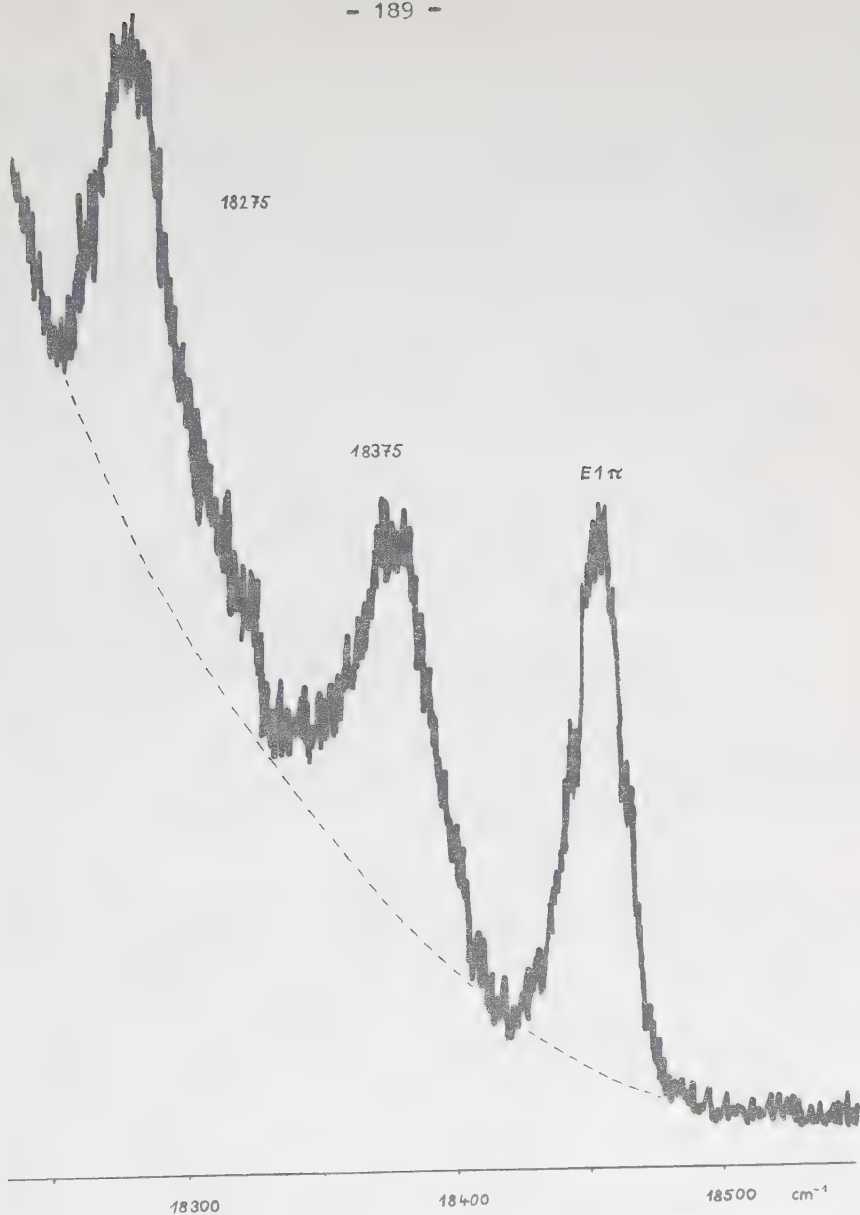


Abb. 68. Struktur der Emission um 18400 cm^{-1} bei 28K
in π -Polarisation mit der Spinwellenseitenbande $E1\pi$.
Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 61.
Maximumsintensität von $E1\pi$ etwa 230 cps.

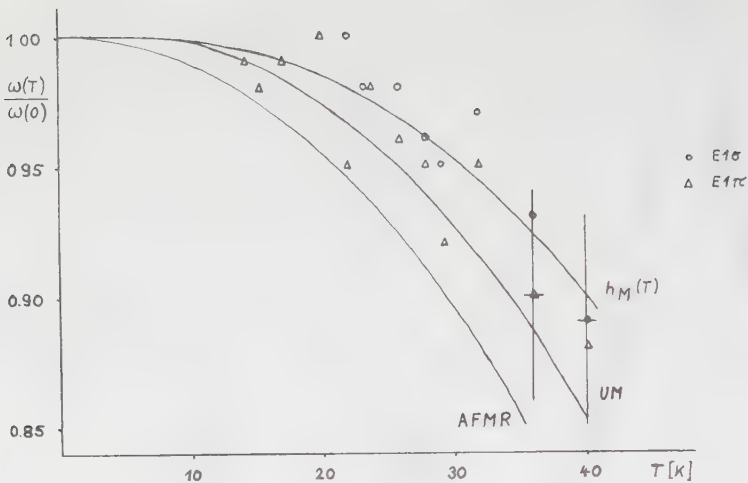


Abb. 69. Temperaturgang der korrigierten (siehe Text) Spinwellenenergie für die Spinwellenseitenbanden $E1\sigma$ und $E1\pi$.

sierung entspricht, und berücksichtigt man, daß $\omega_{\vec{k}}^{M1\sigma}(T)$ unabhängig von $\vec{k}$ ist, kann man eine Wechselwirkungsenergie abschätzen: $\omega_{\vec{k}}^{\text{int}} \approx 11 \text{ cm}^{-1}$ für $E1\pi$. Der damit erhaltene Temperaturgang der Meßwerte ist in Abb. 69 dargestellt. Innerhalb der Meßfehler ist es auch möglich den Temperaturgang der Energiedifferenz von $E1\pi$ auf die AFMR-Kurve in Abb. 69 zu normieren. Die entsprechende Wechselwirkungsenergie beträgt etwa 10 cm^{-1} .

Für $E1\sigma$ kann man dasselbe Verfahren durchführen. Da zu dieser Bande im wesentlichen die Punkte Z und A beitragen, ist $\omega(\vec{k}) = 54.0 \text{ cm}^{-1}$. Mit $h_{\vec{k}}(23) \approx 0.98$ findet man $\omega_{\vec{k}}^{\text{int}} \approx 2 \text{ cm}^{-1}$. Die damit erhaltene Kurve ist ebenfalls in Abb. 69 wiedergegeben.

Für $\omega_K^{\text{int}} \approx 0 \text{ cm}^{-1}$ folgt der Temperaturgang etwa der UM-Kurve in Abb. 69. Innerhalb der Meßfehler ist es dagegen nicht möglich, die experimentellen Werte mit der AFMR-Kurve in Einklang zu bringen. Aus den Messungen von Sell et al. /16/ und Meltzer et al. /78/ lassen sich ebenfalls Werte für die Wechselwirkungsenergie jedoch in Absorption und bei OK abschätzen. Für $E1\sigma$ ergeben sich 3 cm^{-1} und für $E1\pi$ 7.5 cm^{-1} . Der Wert für $E1\sigma$ stimmt mit den hier abgeschätzten etwa überein. Für $E1\pi$ ist der hier bestimmte Wert etwa 2 cm^{-1} größer. Diese Differenz liegt außerhalb des Meßfehlers. Die Ursache dafür ist unklar.

Als sechste Bande gehört die bei $18\,375 \text{ cm}^{-1}$ zu dieser Gruppe. Sie wird nur in π -Polarisation beobachtet und entspricht deshalb einem elektrischen Dipolübergang. Die Bande ist breit, mit einer HWB von etwa 24 cm^{-1} bei 5K, die mit der Temperatur bis auf 34 cm^{-1} bei 36K zunimmt.

Aus dem Verhalten der relativen Intensität zu $H1\sigma$ und dem Temperaturgang der Energie, kann geschlossen werden, daß die Bande bis etwa 10K und von 14K an zwei verschiedenen Übergängen entspricht. Bei tiefen Temperaturen verhält sie sich wie die Störstellen-induzierte Struktur, die bis 9K die Bande $H1\sigma$ überdeckt, und wird deshalb in diesem Temperaturbereich jener Gruppe zugeordnet.

Von etwa 14K an ist die relative Intensität bezüglich $H1\sigma$ konstant und über den beobachteten Temperaturbereich gemittelt etwa 0.27. $18\,375 \text{ cm}^{-1}$ ist also ein cold-band.

Die Energiedifferenz zu $M1\sigma$ beträgt etwa 46 cm^{-1} und bleibt innerhalb der Meßgenauigkeit, die durch die außerordentliche Breite beschränkt ist, bei Temperaturerhöhung konstant. Dieses experimentelle Ergebnis spricht gegen die Interpretation der Bande als Spinwellenseitenbande.

Andererseits zeigt das Profil die für eine Spinwellenseitenbande charakteristische Form, nämlich flacher Anstieg der dem $M1\sigma$ -Exziton zugewandten Flanke und scharfer Abfall der anderen Flanke, siehe Abb. 70. Eine Struktur der Bande ist nicht sicher festzustellen.

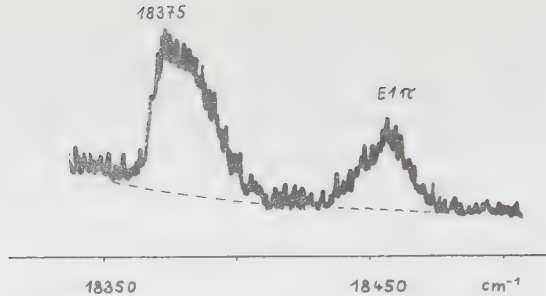


Abb. 70. Die Bande bei 18375 cm^{-1} in π -Polarisation bei 17K.
 Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 61.
 Maximumsintensität der 18375 cm^{-1} -Bande etwa 110 cps.

Die Gleichung (III.1) sagt für cold-band-Emission und π -Polarisation eine Bande voraus, die durch das Übergangsmoment $P^\pi(3)[\sin^2(k_x a) + \sin^2(k_y a)]u_K^2$ bestimmt ist. Dieser Übergang entspricht völlig jenem der zur $H1\sigma$ -Bande führt, mit dem einzigen Unterschied, daß $H1\sigma$ von Paarmomenten zwischen nächsten Nachbarn und der oben genannte Übergang von Paarmomenten zwischen drittnächsten Nachbarn abhängt. Wegen der kurzen Reichweite der Austauschwechselwirkung erwartet man, daß dieser zweite Übergang wesentlich schwächer als $H1\sigma$ ist.

Setzt man die Paarmomente $P^\pi(3)$ und $P^\sigma(1)$ gleich 1, dann erhält man für die Intensitäten der zweiten Bande zu $H1\sigma$ ein theoretisches Verhältnis von 2:1.

Identifiziert man die beobachtete Bande mit diesem Übergang, so läßt sich ein Verhältnis von $P^\pi(3)$ zu $P^\sigma(1)$ von etwa 0.13 abschätzen. Somit spricht die beobachtete Intensität nicht gegen diese Zuordnung.

Durch den Geometriefaktor werden wie bei $H1\sigma$ die Beiträge der kritischen Punkte unterdrückt. Die Abb. 71 zeigt das Ergebnis der Rechnung für 2 cm^{-1} Spaltbreite und OK. Man erhält eine

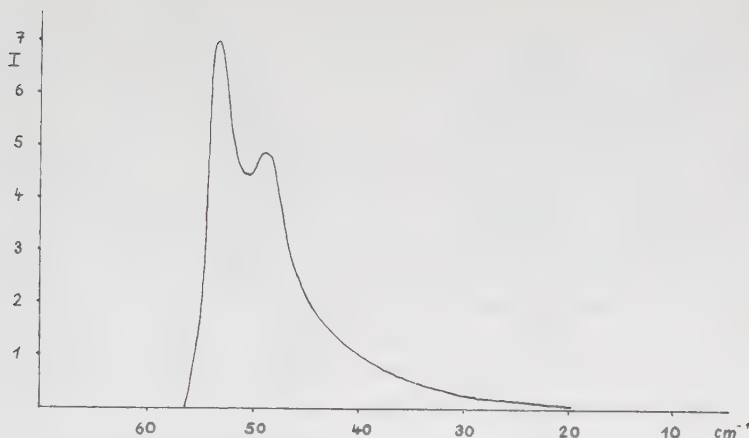


Abb. 71. Theoretische Spinwellenseitenbande in Emission und π -Polarisation. Dabei sind drittnächste Nachbarn gekoppelt. Die Energie ist als Differenzenergie zum Exziton angegeben. Intensität in beliebigen Einheiten.

breite Bande, HWB etwa 8 cm^{-1} , mit zwei Maxima bei 48.5 und 53.5 cm^{-1} .

Man erwartet, daß für diesen Übergang die Exziton-Magnon-Wechselwirkung eine ähnlich geringe Rolle wie für $H1\sigma$ spielt. Deshalb scheint es nicht möglich zu sein, die $18\,375 \text{ cm}^{-1}$ -Bande diesem Übergang zuzuordnen, denn die Erklärung des experimentellen Ergebnisses erfordert eine große Magnonendämpfung und eine Wechselwirkungsenergie von etwa 6 cm^{-1} , im krassen Gegensatz zu der guten Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie für $H1\sigma$. Die Zuordnung dieser Bande bleibt somit unklar.

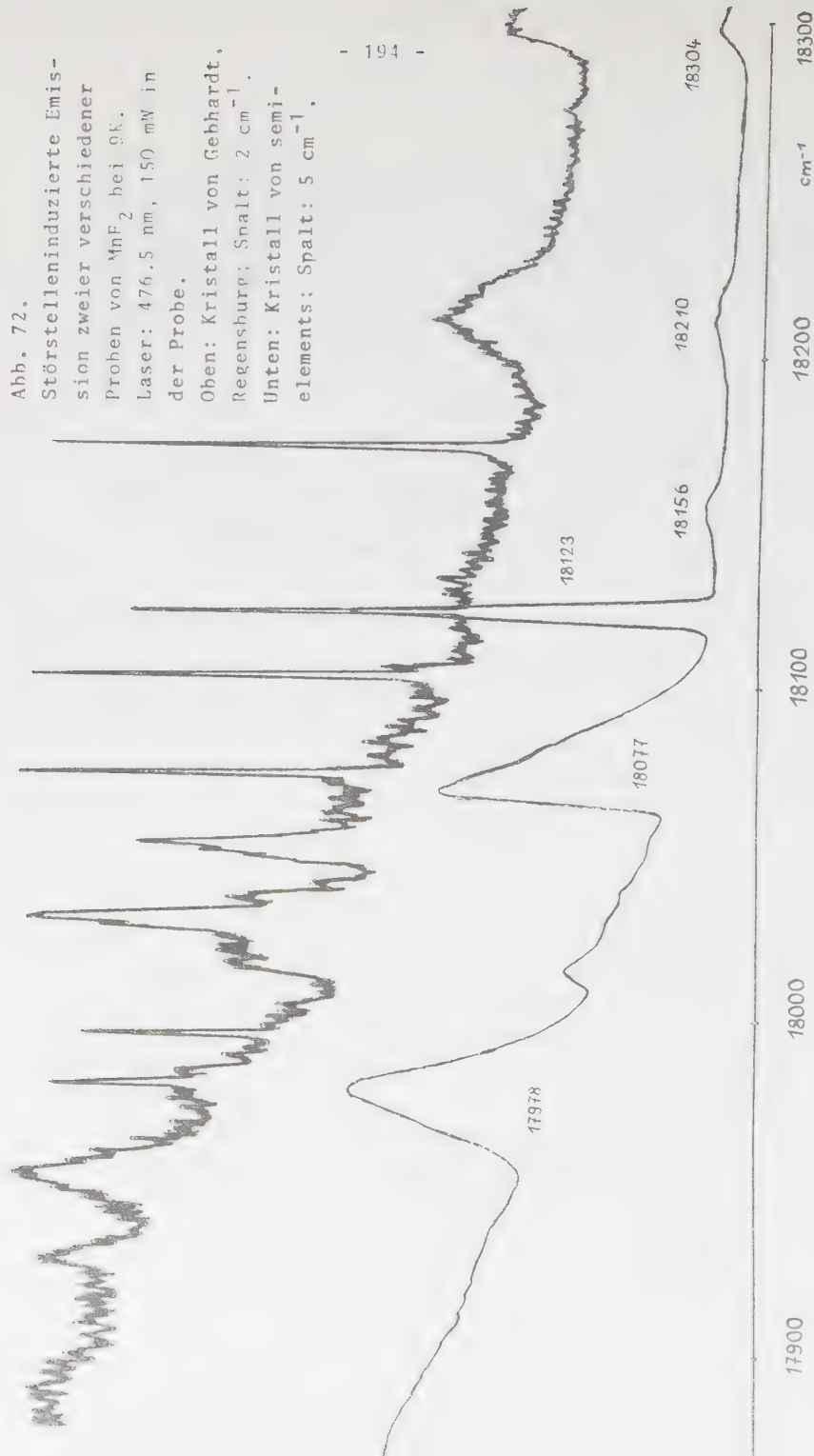
Abb. 72.

Störstelleninduzierte Emission zweier verschiedener Proben von MnF_2 bei 9 K.

Laser: 476.5 nm, 150 mW in der Probe.

Oben: Kristall von Gebhardt, Regensburg; Spalt: 2 cm^{-1} .

Unten: Kristall von semielements; Spalt: 5 cm^{-1} .



3.2. Fehlstelleninduzierte Übergänge

In den Abbildungen 59 und 60 wurde die Fluoreszenzbande bei etwa 10K gezeigt. Die scharfe Struktur auf der "blauen" Seite der Bande ist etwa 300 cm^{-1} zu niedrigeren Energien gegenüber derjenigen Struktur verschoben, die man in Absorption beobachtet. (Die im letzten Abschnitt besprochenen Banden um $18\,400\text{ cm}^{-1}$ sind in diesen Abbildungen wegen zu geringer Intensität nicht zu sehen.) Die Spektren wurden mit der Probe von semi-elements erhalten. In der Abb. 72 ist ein Ausschnitt aus den Spektren, die mit den Proben von semi-elements und von Gebhardt erhalten wurden, miteinander verglichen. Die beobachtete Struktur ist offensichtlich von der Probe abhängig und kann deshalb keine kristalleigene, sondern muß eine Folge von Fehlstellen des Kristalls sein.

Ein Großteil der hier beobachteten Linien wurde bereits in den Arbeiten /90/, /91/, /92/ und /93/ untersucht und zugeordnet. Der Grund, weshalb sie hier noch einmal besprochen werden, ist die Absicht, die große Ähnlichkeit der fehlstelleninduzierten und der kristalleigenen Struktur aufzuzeigen und für einige bisher noch nicht beobachtete Banden in diesem Zusammenhang eine Zuordnung vorzuschlagen. Bei Banden, deren Zuordnung unklar ist, kann diese Ähnlichkeit möglicherweise die Interpretation erleichtern.

Bereits 1966 wurde eine intensive Struktur im optischen Emissionsspektrum von MnF_2 beobachtet /76/, ohne daß die Ursache dafür klar war. In der Folgezeit wurden diese Übergänge besonders von den Gruppen um Sell /90/, /91/ und Dietz /92/, /93/ untersucht.

Bei der Beobachtung der Emission fällt sofort die große Ähnlichkeit mit dem Exzitonen- und Spinwellenseitenbandenspektrum in Absorption auf, so daß die Vermutung naheliegt, daß in irgend einer Weise Mn^{++} -Ionen an diesen Übergängen beteiligt sind.

Die Gruppe von Sell untersuchte die Struktur, indem sie MnF_2 gezielt dotierte /90/. Dabei konnte sie zeigen, daß der Einbau von Mg^{++} , Zn^{++} - und Ca^{++} -Ionen auf Mn^{++} -Gitterplätzen zu scharfen Linien im Emissionsspektrum zwischen $18\,400$ und $18\,000\text{ cm}^{-1}$ führt.

Die Anregungsenergie dieser Ionen liegt höher als die der Mn^{++} -Ionen, so daß sich die Anregung nicht auf den Fehlstellen selbst befinden kann. Die Ionen bewirken dagegen eine Störung der sie umgebenden Mn^{++} -Ionen. Es treten dabei Energieniveaus auf, die tiefer als die ungestörten Niveaus $M1\sigma$ und $M2\sigma$ liegen. (Wegen der vernachlässigbaren Dispersion der kristalleigenen Exzitonen kann man in diesem Zusammenhang von der kollektiven Anregung im $\bar{k}$ -Raum, Exzitonenanregung $M1\sigma$ und $M2\sigma$, oder von Einionen-anregung im direkten Gitter sprechen.) Die gestörten Mn^{++} -Ionen wirken bei tiefen Temperaturen, wo kT klein gegenüber der Energiedifferenz zwischen ungestörtem und gestörtem Niveau ist, als "traps" für die Anregungsenergie.

Die Untersuchung des Temperaturverhaltens der Intensität und der Lebensdauer der störstelleninduzierten Struktur durch Greene, Sell et al. /90/ in einem Modell, das auf den oben skizzierten Vorstellungen aufbaut, zeigt, daß die Experimente mit der Annahme konsistent sind, daß durch die Störung das $M1\sigma$ -Niveau der gestörten Ionen abgesenkt wird. Deshalb werden diese Niveaus oft als lokalisierte Exzitonen bezeichnet. Eine weitere Bestätigung für diese Interpretation erhält man, wenn man die Störstellenstruktur bei uniaxialen Druck untersucht. Dabei verhalten sich die beobachteten Linien wie die kristalleigenen Exzitonen, aus denen sie durch die Störung hervorgehen /91/.

Die Lagesymmetrie eines ungestörten Mn^{++} -Ions ist $D_{2h}(C_{2h})$ im antiferromagnetischen Zustand. Da die Terme der $3d^5$ -Konfiguration gerade Parität haben, sind zwischen diesen nur magnetische Dipolübergänge erlaubt.

Durch den Einbau von Fremdatomen auf Mn^{++} -Gitterplätzen wird die Lagesymmetrie der umgebenden Mn^{++} -Ionen erniedrigt. Die wichtigste Folge dieser Störung ist, daß die Inversionssymmetrie aufgehoben wird. Damit können die Übergänge auch elektrisch dipolaktiv werden. Da sich die Lagesymmetrien der verschiedenen Nachbarn eines Fremdatoms unterscheiden, ergeben sich Polarisationsseigenschaften der fehlstelleninduzierten Übergänge, die es erlauben Rückschlüsse auf die Störung zu ziehen. Das soll im folgenden erläutert werden.

Die kristalleigenen Exzitonen $M1\sigma$ und $M2\sigma$ haben nach Tabelle 10

für $\vec{K} = 0$ DB_{1g} -Symmetrie in $D_{4h}^{14}(D_{2h}^{12})$, oder $D\Gamma_3^+$ -Symmetrie in der Bezeichnung von Koster et al. /66/. Der entsprechende Einionenübergang in der Lagegruppe $D_{2h}(C_{2h})$ hat die Symmetrie $D\Gamma_1^+$. Ist ein Mn^{++} -Ion nächster Nachbar eines Fremdatoms, so erniedrigt sich die Lagesymmetrie auf $C_{2v}(C_2)$, für einen drittnächsten Nachbarn auf $C_{1h}(C_{1h})$. In beiden Gruppen hat der Einionenübergang die Symmetrie $D\Gamma_1$.

In $C_{2v}(C_2)$ transformieren sich die z-Komponenten eines polaren und eines axialen Vektors wie diese Darstellung, so daß der Übergang bei dieser Störung sowohl magnetisch dipolaktiv in σ -Polarisation als auch elektrisch dipolaktiv in π -Polarisation wird.

In $C_{1h}(C_{1h})$ transformieren sich die z-Komponente eines axialen und die x- oder y-Komponente eines polaren Vektors wie diese Darstellung, so daß der Übergang bei dieser Störung magnetisch dipolaktiv in σ - und elektrisch dipolaktiv in σ - und α -Polarisation wird.

Für ein Mn^{++} -Ion, das zweitnächster Nachbar eines Fremdatoms ist, erniedrigt sich die Lagesymmetrie auf $C_s(C_1)$. Somit ist der Übergang magnetisch und elektrisch dipolaktiv in allen Polarisationen. Diese Betrachtung liefert somit keine Information. Da man jedoch erwartet, daß die Änderungen im Spektrum bei kleinen Störungen, d.h. bei kleinen Energieänderungen, klein sein werden, verwenden Sell et al. /91/ eine angenäherte Lagesymmetrie, indem sie den Zeitinversionsoperator unberücksichtigt lassen. Damit ist der gestörte Übergang magnetisch dipolaktiv in allen Polarisationen und elektrisch dipolaktiv in σ - und α -Polarisation. Man erhält damit die folgende Tabelle, die bereits in /91/ angegeben ist.

Tabelle 12. "like"-Übergänge bei Störung der Lagesymmetrie

Art des Nachbarn	Lagesymmetrie	Art und Polarisation eines "like"-Übergangs		
		σ	π	α
ungestört	$D_{2h}(C_{2h})$	M	-	-
1	$C_{2v}(C_2)$	M	E	-
2	$C_s(C_1) \rightarrow C_s$	M, E (M)	E, (M)	
3	$C_{1h}(C_{1h})$	M, E	-	E

Hier bedeutet (M), daß die entsprechende Linie im ungestörten Kristall nicht erlaubt ist. Man erwartet sie also schwächer als die M-Linien. Für "unlike"-Exzitonen, die in $D_{4h}^{14}(D_{2h}^{12}) DB_{2g}$ - oder DB_{3g} -Symmetrie haben, erhält man ein ähnliches Ergebnis, siehe auch /91/.

Das Wesentliche ist, daß man aufgrund der Polarisierung beobachteter Linien, falls die (M)-Linien zu sehen sind, eindeutig auf die Art der Störung schließen kann.

Misetic /92/ bestimmt die Profile der Spinwellenseitenbanden für OK, die man bei den verschiedenen gestörten $M1\sigma$ -Übergängen erwartet, allerdings nur für Kopplung nächster Nachbarn bei der Zweizentrenanregung. Diese Beschränkung ist offensichtlich dadurch motiviert, daß man bisher in der kristalleigenen Emission bei T-OK keine Spinwellenseitenbande beobachtet hat, die durch Kopplung drittnächster Nachbarn entsteht, wenngleich die Bande bei $18\,375\text{ cm}^{-1}$ in π -Polarisation möglicherweise als ein solcher Übergang erklärt werden kann, siehe 3.1. Die Kopplung zwischen zweitnächsten Nachbarn führt in Emission zu hot-bands, siehe 1.3. Die Untersuchung von Misetic führt zu folgenden Ergebnissen: siehe dazu Abb. 73.

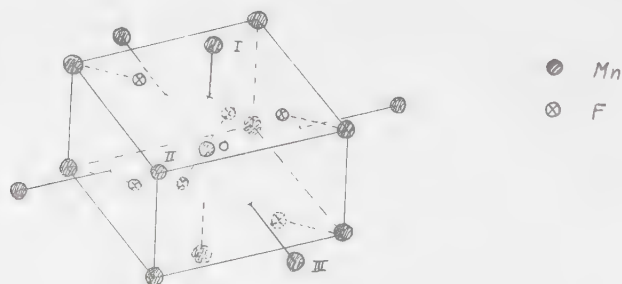


Abb. 73 Einheitszelle von MnF_2 mit nächsten (I), zweitnächsten (II) und drittnächsten (III) Nachbarn eines Mn^{++} -Ions (O).

Wenn das gestörte Mn^{++} -Ion nächster Nachbar einer Störstelle ist, ist die emittierte Intensität

$$I(\omega) = C \sum_{\vec{k}} u_{\vec{k}}^2 \delta(\hbar\omega - E'^{ex} + W_{\vec{k}}).$$

C ist ein Proportionalitätsfaktor, E'^{ex} die Energie des lokalisierten Exzitons, $W_{\vec{k}}$ die Spinwellenenergie und $u_{\vec{k}}$ die Kopplungsfunktion der Untergitter. Die Intensität ist also im wesentlichen proportional zur Spinwellenzustandsdichte, so daß man eine Bande mit zwei Maxima bei 48.5 und 53.5 cm^{-1} erwartet, siehe Abb. 3.

Bei zweitnächsten Nachbarn einer Störstelle sind die nächsten Nachbarn teilweise selbst zweitnächste Nachbarn der Störstelle (siehe Abb. 73). Die Spinwellenseitenbande wird deshalb ebenfalls gestört sein. Misetich untersucht diesen Fall nur qualitativ und erklärt die beobachtete Seitenbande mit zwei Maxima bei 45 und 52 cm^{-1} , bei kleineren Energien also als die zwei Maxima der Zustandsdichte, durch diese Störung.

Wenn das gestörte Mn^{++} -Ion drittnächster Nachbar der Störstelle ist, sind die zwei nächsten Nachbarn dieses Ions praktisch nicht mehr von der Störstelle beeinflusst. Die emittierte Intensität ist in diesem Fall

$$I(\omega) = C' \sum_{\vec{k}} u_{\vec{k}}^2 \sin^2(k_z c) \delta(\hbar\omega - E'^{ex} + W_{\vec{k}}).$$

Man erhält dasselbe Profil wie für σ -polarisierte kristalleigene Seitenbanden in Emission, z.B. $H1\sigma$, siehe (III.1) und Abb. 64.

3.2.1. Die Linien um 18 400 cm^{-1}

In der Abb. 61 sind fünf Linien zu sehen, die stark von der Temperatur beeinflusst werden und deshalb offensichtlich durch Störstellen induziert werden. Drei dieser Linien sind so intensitätsschwach, daß sie nicht weiter untersucht wurden. Die beiden Linien bei 18 365 cm^{-1} und 18 373 cm^{-1} können dagegen in ihrem Polarisationsverhalten beobachtet werden.

Die 18 373 cm^{-1} -Linie wurde bereits von Misetich /92/ beobachtet

und einem drittnächsten Nachbarn einer Störstelle, wahrscheinlich Mg^{++} , zugeordnet. Tatsächlich wird die Linie nur in σ - und α -Polarisation beobachtet, was nach Tabelle 12 zu dieser Interpretation führt. Die zugehörige elektrisch dipolaktive Spinwellenseitenbande, $18\,321\text{ cm}^{-1}$, ist in der Abb. 74 zu sehen, siehe auch /92/. Sie hat nur ein Maximum und ist um etwa 51 cm^{-1} gegenüber der Nullmagnonenlinie $18\,373\text{ cm}^{-1}$ verschoben. Die Zuordnung der Bande zur $18\,373\text{ cm}^{-1}$ -Linie erfolgt eindeutig aus dem Temperaturverhalten. Bei 9K ist die Seitenbande wie das lokalisierte Exziton, siehe Abb. 61, praktisch völlig verschwunden. Das Profil der Seitenbande hat große Ähnlichkeit mit dem Profil von $\text{H}1\sigma$ und auch die Energieverschiebung zum lokalisierten Exziton stimmt gut mit dem dort gemessenen Wert überein, wie man es nach der Theorie von Missetich erwartet.

Die $18\,365\text{ cm}^{-1}$ -Linie wurde bisher noch nicht beobachtet. Sie erscheint in allen Polarisationsrichtungen, wobei das Verhältnis der Intensität für σ - und π -Polarisation etwa 5:1 beträgt. Die Halbwertsbreite der Linie liegt in der Größenordnung der spektralen Spaltbreite, so daß man sie nach Tabelle 12 der lokalisierten Anregung eines zweitnächsten Nachbarn einer Störstelle zuordnen wird. Als Spinwellenseitenbande erwartet man eine Bande mit zwei Maxima bei $18\,313$ und $18\,319\text{ cm}^{-1}$, wobei das erste wesentlich schwächer als das letztere ist, siehe unten. Diese Bande konnte nicht beobachtet werden. Der Grund dafür ist, daß die Struktur bei $18\,300\text{ cm}^{-1}$, siehe Abb. 73, um mehrere Größenordnungen intensiver ist und den entsprechenden Spektralbereich überdeckt.

Die $18\,365\text{ cm}^{-1}$ -Linie wurde in beiden untersuchten Proben beobachtet. Da über die Zusammensetzung der Dotierung nichts bekannt ist, kann keine Zuordnung zu einem bestimmten Fremdatom vorgenommen werden.

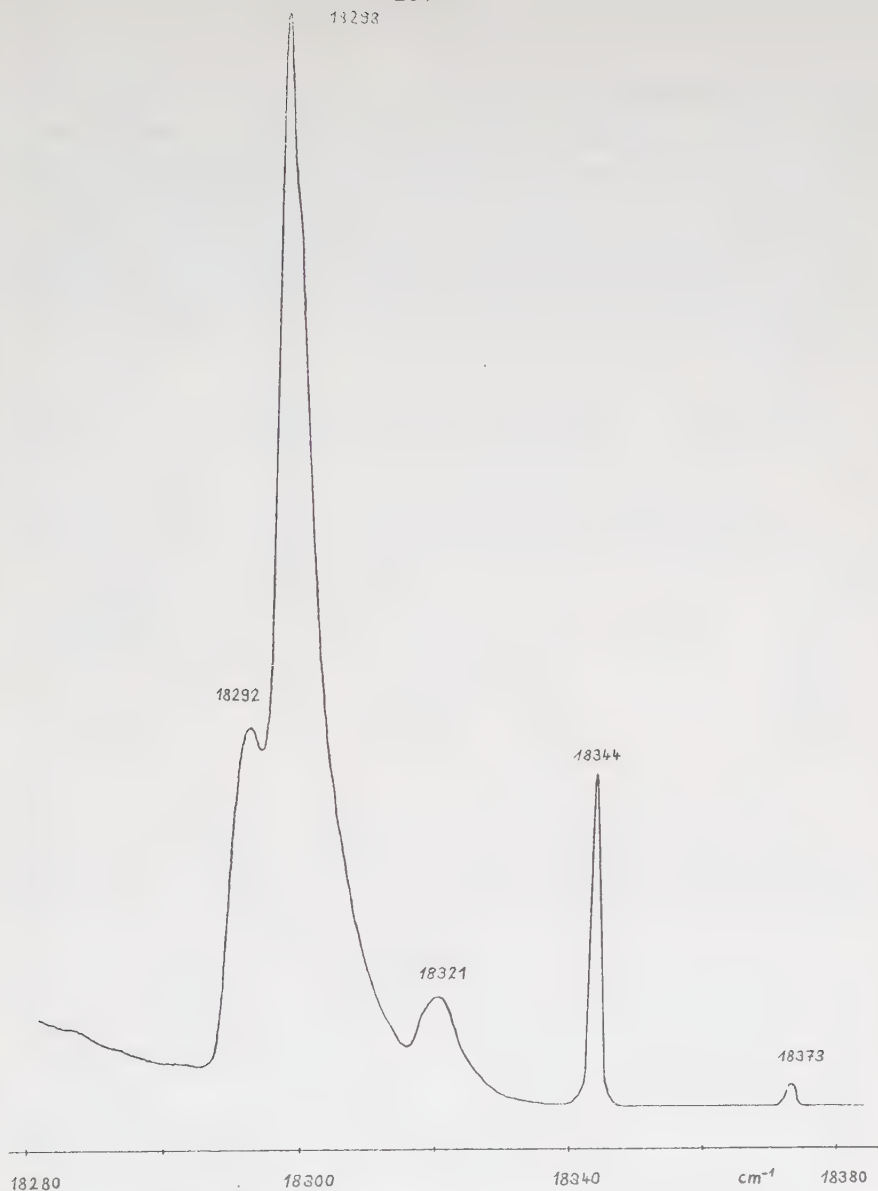


Abb. 74. Die störstelleninduzierte Emission um $18\,300\,\text{cm}^{-1}$ in σ -Polarisation und bei 5K.
 Anregung: 476.5 nm-Laserlinie, etwa 12 mW in der Probe.
 Spektrale Spaltbreite: $2\,\text{cm}^{-1}$.
 Maximumsintensität der $18\,298\,\text{cm}^{-1}$ -Bande etwa 450 000 cps.

3.2.2. Die Linien um $18\,300\text{ cm}^{-1}$

Die intensivste Gruppe von Linien und Banden wurde bei beiden Proben im Spektralbereich um $18\,300\text{ cm}^{-1}$ beobachtet. Die Intensitäten aller dieser Linien verhalten sich bei Temperaturerhöhung gleich. Sie nehmen stetig ab, so daß die Gruppe nur bis etwa 12K verfolgt werden kann. Die Eigenschaften der wesentlichen Linien und Banden der Gruppe sind in der Tabelle 13 zusammengestellt.

Tabelle 13. Die störstelleninduzierte Gruppe um $18\,300\text{ cm}^{-1}$.

Linie [cm^{-1}]	Polarisation	Dipolübergang	HWB [cm^{-1}]	Intensitäts- verhältnis
18344	σ, π, α	M,E	2	0.064 (σ)
18304	π	E	21	0.14 (π)
18298/ 18292	σ, α	E	6	1 (σ)
18210	π	E	21	0.16 (π)

In der letzten Spalte sind die Intensitäten der Linien in den angegebenen Polarisierungen miteinander verglichen. Die spektrale Spaltbreite betrug bei diesen Messungen etwa 2 cm^{-1} .

Die Linie bei $18\,344\text{ cm}^{-1}$ hat gemischten elektrischen und magnetischen Dipolcharakter. Das Intensitätsverhältnis von σ - zu π -Polarisation beträgt etwa 30:1. Die Linie spaltet in einem Magnetfeld parallel zur z-Achse wie die Exzitonenlinien M1 σ und M2 σ auf, /76/. Nach Tabelle 12 hat ein Exziton, das auf einem Mn⁺⁺-Ion lokalisiert ist, das zweitnächster Nachbar einer Störstelle ist, das beobachtete Polarisationsverhalten. Nach den Untersuchungen von Greene, Sell et al. /90/ und Misetich /92/ hat die Linie ihre Ursache in der Störung durch ein Mg⁺⁺-Ion. Die Abb. 74 zeigt die Spinwellenseitenbande zu diesem lokalisierten Exziton. Die Bande hat zwei Maxima im Abstand von etwa 6 cm^{-1} , d.h. etwa im Abstand der beiden Maxima der Zustandsdichte.

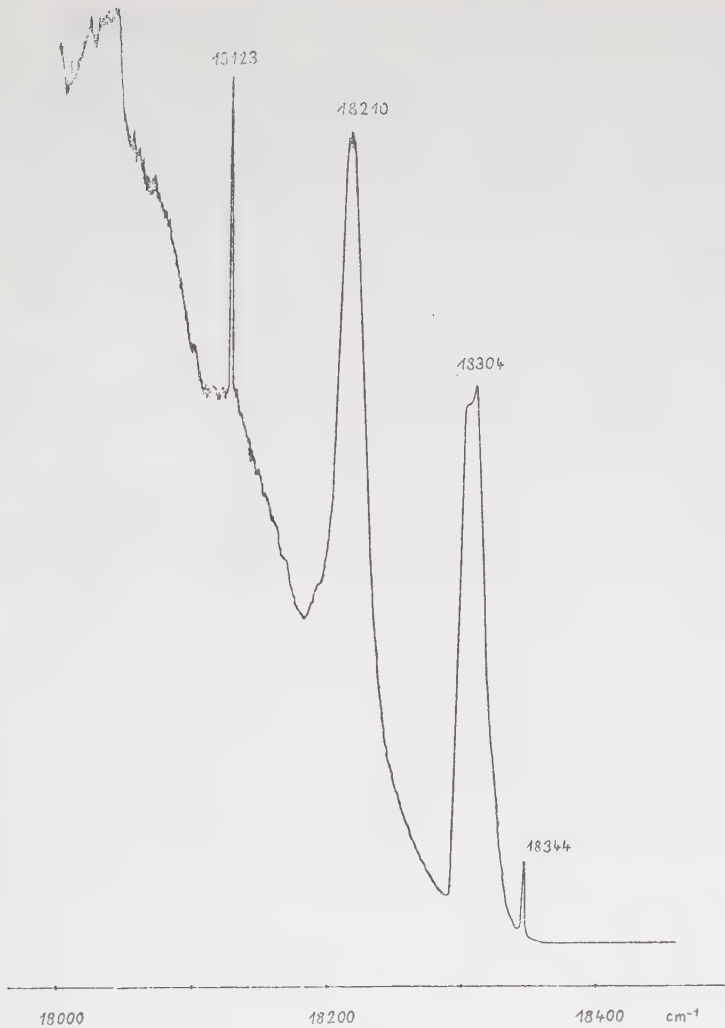


Abb. 75. Die störstelleninduzierte Emission um $18\,300\text{ cm}^{-1}$ in π -Polarisation bei 5K.

Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 74.

Maximumsintensität der $18\,304\text{ cm}^{-1}$ -Bande etwa 28 000 cps.

Allerdings ist die Energieverschiebung gegenüber der Nullmagnonenlinie mit 46 und 52 cm^{-1} etwa 2 cm^{-1} kleiner als die Energie der Maxima der Zustandsdichte. Außerdem wird das höherenergetische Maximum stark unterdrückt. Misetich erklärt dieses Verhalten durch die starke Wechselwirkung mit der Störstelle, siehe oben. Bei genauer Betrachtung ist etwa 1 cm^{-1} unterhalb des Maximums der Bande eine Schulter zu beobachten. Diese Schulter war reproduzierbar zu erhalten und ihre Ursache liegt wohl in der Struktur der einzelnen Maxima der Zustandsdichte, d.h. darin, daß L_3 verschieden von Null ist.

Die beiden π -polarisierten, elektrisch dipolaktiven Banden sind in Abb. 75 dargestellt. Vergleicht man diese Abbildung mit der Abb. 68, so erkennt man die große Ähnlichkeit der Struktur. Die störstelleninduzierten Banden 18 304 und $18\,210 \text{ cm}^{-1}$ entsprechen den kristalleigenen bei $18\,375$ bzw. $18\,275 \text{ cm}^{-1}$. Eine ähnliche Struktur findet man auch bei der folgenden Gruppe von Linien. Deshalb wird auf die beiden Banden im Anschluß an die folgende Diskussion noch einmal eingegangen.

3.2.3. Die Linien um $18\,100 \text{ cm}^{-1}$

Bei beiden untersuchten Proben wurde eine Struktur um $18\,100 \text{ cm}^{-1}$ beobachtet, die in /90/ und /92/ durch die Störung durch Ca^{++} -Ionen erklärt wird. Mit der Probe von semi-elements konnte diese Gruppe isoliert beobachtet werden. Bei dem Kristall aus Regensburg findet man zwischen $17\,900$ und $18\,200 \text{ cm}^{-1}$ eine große Anzahl von Übergängen, die sich gegenseitig beeinflussen, so daß eine Zuordnung schwierig ist. Die folgende Diskussion gründet sich auf die mit dem Kristall von semi-elements erhaltenen Spektren.

Diese Gruppe kann bei 5K beobachtet werden, allerdings mit wesentlich geringerer Intensität als die unter 3.2.2. besprochene Gruppe. Die Intensität nimmt bis 10K zu, bleibt bis etwa 13K konstant und nimmt dann zu höheren Temperaturen stetig ab. Die wichtigsten Linien und Banden dieser Gruppe sind in Tabelle 14 zusammengestellt.

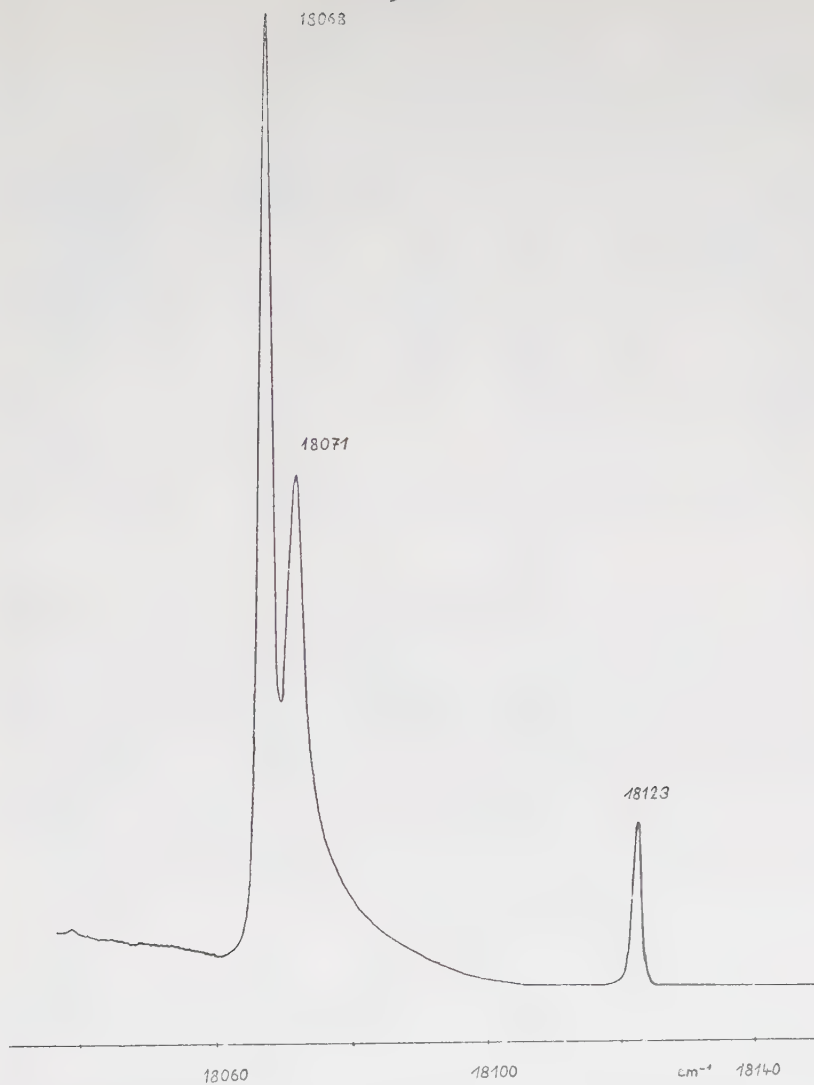


Abb. 76. Die störstelleninduzierte Gruppe um $18\,100\text{ cm}^{-1}$
in σ -Polarisation bei 12K.
Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 74.
Maximumsintensität der $18\,068\text{ cm}^{-1}$ -Bande etwa 210 000 cps.

Tabelle 14. Die störstelleninduzierte Gruppe
um $18\ 100\text{ cm}^{-1}$

Linie [cm^{-1}]	Polarisation	Dipolübergang	HWB [cm^{-1}]	Intensitäts- verhältnis
18161 (20K)	σ, α	E	14	(hot-band)
18156 (11K)	π	E	11	(hot-band)
18123	σ, π	M, E	2	0.07 (π)
18077	π	E	21	0.18 (π)
18071/ 18068	σ, α	E	6	1 (σ)
17978	σ, π, α	E	21	0.3 (σ) 0.3 (π)

Die spektrale Spaltbreite betrug wie in Tabelle 13 etwa 2 cm^{-1} .

Die Linie bei $18\ 123\text{ cm}^{-1}$ hat gemischten elektrischen und magnetischen Dipolcharakter. Das Intensitätsverhältnis von σ - zu π -Polarisation beträgt etwa 1:2. Die Linie spaltet wie die bei $18\ 344\text{ cm}^{-1}$ in einem Magnetfeld parallel zur z-Achse auf, /76/. Nach Tabelle 12 entspricht sie einem lokalisierten Exziton, wobei das gestörte Mn^{++} -Ion nächster Nachbar einer Störstelle ist. Nach 3.2.1. ist die Intensität der Seitenbande im wesentlichen proportional zur Spinwellenzustandsdichte. Die Abb. 76 zeigt den entsprechenden Ausschnitt aus dem σ -Spektrum. Die Seitenbande hat zwei Maxima im Abstand von etwa 4.5 cm^{-1} , ähnlich wie die Maxima der Zustandsdichte in Abb. 3. Das Verhältnis der Maximumintensitäten der beiden "peaks" beträgt etwa 1:1.8. Dieser Wert stimmt gut mit dem überein, den man aus der mit dem Spaltprofil gefalteten Zustandsdichte bestimmt. Die Energiedifferenzen gegenüber dem lokalisierten Exziton sind mit 51 und 55.5 cm^{-1} um etwa 2 cm^{-1} größer als die Energien der Maxima der Zustandsdichte. Diese Differenz liegt außerhalb der Meßfehler, so daß man sie als Wechselwirkungsenergie mit dem gestörten Exziton oder der Störstelle interpretieren muß.

Die Linie bei $17\ 978\text{ cm}^{-1}$ wird in allen drei Polarisationen beobachtet. Bei genauer Betrachtung ist jedoch ein geringer Unter-

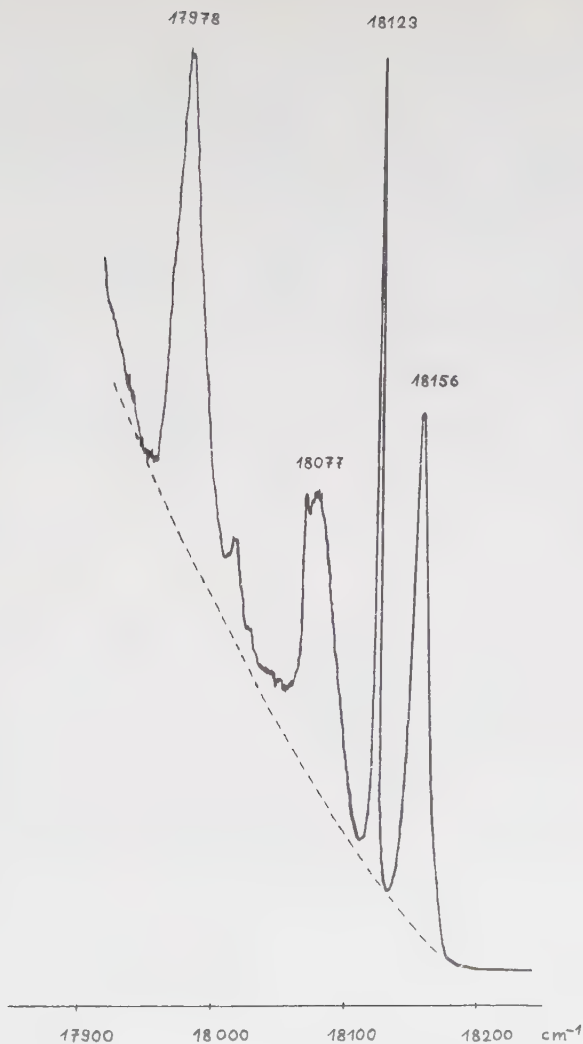


Abb. 77. Die störstelleninduzierte Gruppe um $18\,100\,\text{cm}^{-1}$ in π -Polarisation bei 20K.

Anregung: 476.5 nm-Laserlinie, etwa 150 mW in der Probe.

Spektrale Spaltbreite: etwa $2\,\text{cm}^{-1}$

Maximumsintensität der $18\,156\,\text{cm}^{-1}$ -Bande etwa 28 00 cps.

schied im Profil und in der Position für die σ - und π -Polarisation zu erkennen. Man hat die Bande deshalb zwei wenig verschiedenen elektrisch dipolaktiven Übergängen zuzuordnen. Sie wird zusammen mit der Bande bei $18\,077\text{ cm}^{-1}$, mit den entsprechenden Banden der Tabelle 13 und mit zwei kristalleigenen Übergängen weiter unten diskutiert.

Sehr interessant ist das Auftreten der beiden elektrisch dipolaktiven hot-bands. In den Abbildungen 77 und 78 sind die Spektren in σ - und π -Polarisation dargestellt. Vergleicht man diese Spektren mit denen in Abb. 67 und 68, so erkennt man die sehr große Ähnlichkeit zwischen kristalleigener und störstelleninduzierter Struktur, so daß hier folgende Zuordnung getroffen wird:

Die Bande bei $18\,161\text{ cm}^{-1}$ entspricht der Spinwellenseitenbande $E1\sigma$ in Abb. 67 und jene bei $18\,156\text{ cm}^{-1}$ der Seitenbande $E1\pi$ in Abb. 68.

Nach der Diskussion in 3.1. haben die Seitenbanden $E1\sigma$ und $E1\pi$ ihren Ursprung in einer Kopplung zweitnächster Nachbarn bei der Zweizentrenanregung. Nach Tabelle 12 hat das lokalisierte Exziton seine Ursache in der Störung eines Mn^{++} -Ions durch ein Fremdatom auf dem Platz eines nächsten Nachbarn. Die zweitnächsten Nachbarn dieses gestörten Ions sind zum Teil zweitnächste Nachbarn der Störstelle, siehe Abb. 73, so daß die im Vergleich zu den kristalleigenen Seitenbanden $E1\sigma$ und $E1\pi$ geringere Anregungsenergie, d.h. die Energiedifferenz zu $18\,123\text{ cm}^{-1}$, von 32 cm^{-1} für $18\,156\text{ cm}^{-1}$ bei 10K (37 cm^{-1} für $E1\pi$) und 38 cm^{-1} für $18\,161\text{ cm}^{-1}$ bei 20K (52 cm^{-1} für $E1\sigma$) plausibel ist.

Die Anregungsenergie ist stark temperaturabhängig, wie man es für Spinwellenseitenbanden erwartet. Sie nimmt für beide Banden bis 36K um etwa 5 cm^{-1} ab.

Wegen der sehr großen Intensität der störstelleninduzierten Emission konnte das hot-band bei $18\,156\text{ cm}^{-1}$ bereits bei 9K beobachtet werden. Damit ist die Energie für $T \rightarrow 0\text{K}$ bekannt. Interpretiert man diese Bande als $E1\sigma$ -Seitenbande zum gestörten Exziton bei $18\,123\text{ cm}^{-1}$, so erwartet man bei Vernachlässigung aller Wechselwirkungen eine Anregungsenergie von 49 cm^{-1} , siehe 3.1. Beobachtet werden 32 cm^{-1} , so daß man die Wechselwirkungsenergie



Abb. 78. Die störstelleninduzierte Gruppe um $18\,100\text{ cm}^{-1}$
in σ -Polarisation bei 26K.
Experimentelle Bedingungen wie in Abb. 77.
Maximumsintensität der $18\,068\text{ cm}^{-1}$ -Bande etwa 65 000 cps.

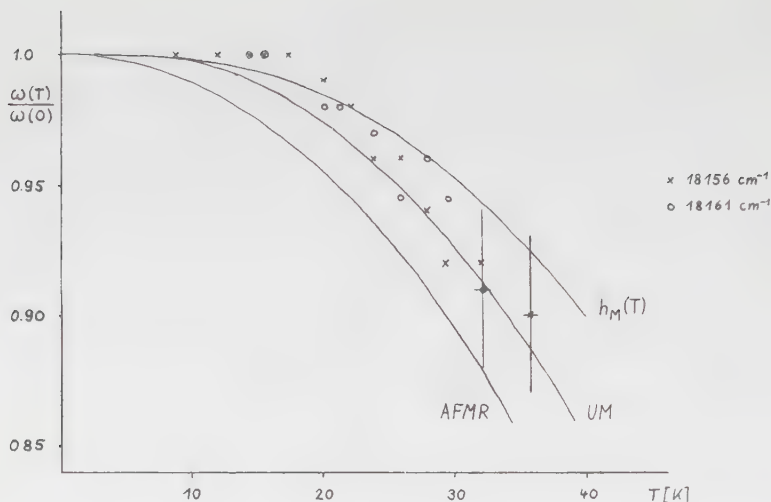


Abb. 79. Die korrigierte und normierte Energiedifferenz der hot-bands der 18 100 cm⁻¹-Gruppe zum gestörten Exziton als Funktion der Temperatur.

zwischen gestörtem Exziton und gestörtem Magnon zu 17 cm⁻¹ berechnen kann. Im ungestörten Fall wurden 11 cm⁻¹ abgeschätzt. Nimmt man die Wechselwirkungsenergie temperaturunabhängig an, so kann man wie in 3.1. eine Renormierungsfunktion abschätzen. Das Ergebnis ist in Abb. 79 wiedergegeben. Die korrigierte Spinwellenenergie folgt etwa dem Temperaturgang der Untergittermagnetisierung. Der Vergleich mit der Abb. 69 zeigt, daß sich die 18 156 cm⁻¹-Bande tatsächlich wie die E1 π -Seitenbande verhält. Die Bande bei 18 161 cm⁻¹ wurde erst bei etwa 14K beobachtet, so daß die Energie für T → 0K nur abgeschätzt werden kann, wie es auch bei der ungestörten Seitenbande E1 σ der Fall war. Interpretiert man die beobachtete Bande als gestörte E1 σ -Seiten-

bande, so beträgt die erwartete Energieverschiebung gegenüber dem lokalisierten Exziton bei OK und ohne Wechselwirkungsenergie etwa 54 cm^{-1} . Durch Wahl der Wechselwirkungsenergie zu 15 oder 14 cm^{-1} (für $E1\sigma$ wurden 2 cm^{-1} abgeschätzt) und unter der Voraussetzung, daß diese Energie temperaturunabhängig ist, kann man den Temperaturgang mit der UM- oder der AFMR-Kurve in Abb. 79 in Einklang bringen. In die Abb. 79 sind die mit 15 cm^{-1} korrigierten Meßwerte eingetragen. Man findet unter der erwähnten Voraussetzung einen ähnlichen Verlauf wie für $E1\sigma$ in der Abbildung 69.

Die oben abgeschätzten Wechselwirkungsenergien bei OK sind wesentlich größer als die für die ungestörten Seitenbanden $E1\sigma$ und $E1\pi$, nämlich um 13 cm^{-1} für die gestörte $E1\sigma$ - und 6 cm^{-1} für die gestörte $E1\pi$ -Seitenbande. Das deutet darauf hin, daß die Spinwellen durch die Zweizentrenanregung in der Nachbarschaft einer Störstelle stark von dieser beeinflusst werden.

3.2.4. Die analogen Banden der kristalleigenen und der störstelleninduzierten Strukturen

Als letzte Banden bleiben jene bei $18\ 304$ und $18\ 210 \text{ cm}^{-1}$ der $18\ 300 \text{ cm}^{-1}$ -Gruppe, Abb. 75, und bei $18\ 077$ und $17\ 978 \text{ cm}^{-1}$ der $18\ 100 \text{ cm}^{-1}$ -Gruppe, Abb. 77 und 78, zu diskutieren. Sie haben große Ähnlichkeit mit den kristalleigenen Banden bei $18\ 375$ und $18\ 275 \text{ cm}^{-1}$ in den Abbildungen 67 und 68. In der folgenden Tabelle sind einige Eigenschaften miteinander verglichen. Diese Gegenüberstellung zeigt, daß die Banden $18\ 375$, $18\ 077$ und wohl auch $18\ 304 \text{ cm}^{-1}$ dieselbe Ursache haben. In 3.1. wurde darauf hingewiesen, daß eine Seitenbande, die durch Kopplung drittnächster Nachbarn entsteht, bisher weder in Absorption noch in Emission mit Sicherheit beobachtet wurde. Es wurden auch die Gründe angegeben, die für und gegen eine solche Interpretation der Bande bei $18\ 375 \text{ cm}^{-1}$ sprechen. Der Vergleich mit den analogen Banden der Störstellenstrukturen erhellt die Situation nicht. Messungen an der $18\ 077 \text{ cm}^{-1}$ -Bande deuten darauf hin, daß die Energiedifferenz zum Exziton $18\ 123 \text{ cm}^{-1}$ wie bei der

18 375 cm^{-1} -Bande bei steigender Temperatur nicht abnimmt, im Gegensatz zur Erwartung für eine Spinwellenseitenbande. Ähnliche Messungen an 18 304 cm^{-1} waren nicht möglich, weil man die Bande nur bis etwa 12K verfolgen kann.

Als zweite Möglichkeit besteht die Interpretation als Phononenseitenbande, wobei das Phonon negative Parität haben muß. In Frage kommen akustische Phononen, die entsprechend niedrige Energien haben. Da aber über die Dispersion und die Zustandsdichte der Phononen negativer Parität nichts bekannt ist, bleibt diese Zuordnung Spekulation.

Tabelle 15. Einige Eigenschaften der analogen Banden

Bande [cm^{-1}]	18375	18275	18304	18210	18077	17978
Intensitätsverhältnis	(14K)		(6K)		(12K)	
zur jew. Seitenbande	0.27	0.45	0.14	0.16	0.18	0.30
zum jew. Exziton	3.6	6.0	2.2	2.5	2.6	4.3
Energiedifferenz cm^{-1}						
zur jew. Seitenbande	-6	94	-6	88	-9	90
zum jew. Exziton	46	146	40	134	46	145
HWB [cm^{-1}]	21	21	21	21	21	21

Röder et al. /94/ untersuchten die Phononenseitenbanden der $\text{E1}\alpha$ -Bande in Absorption und erhielten das Einphononenspektrum und die Zustandsdichte der ankoppelnden Moden für Phononen gerader Parität. In Abb 80 ist das Ergebnis für die Zustandsdichte wiedergegeben. Das Einphononenspektrum hat im wesentlichen dieselbe Struktur, jedoch mit anderen Intensitätsverhältnissen der "peaks". Bei etwa 90 cm^{-1} tritt ein erstes Maximum auf. Deshalb ist es möglich, die Banden bei 18 275, 18 210 und 17 978 cm^{-1} als Phononenseitenbanden zur jeweiligen Spinwellenseitenbande zu interpretieren.

Andererseits ergeben die Messungen, daß die Energiedifferenz der 18 275- und 17 978 cm^{-1} -Banden zum jeweiligen Exziton oder

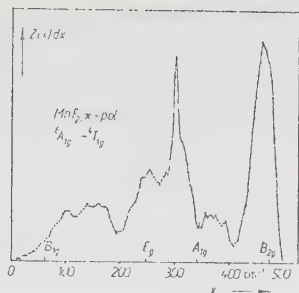


Abb. 80. Zustandsdichte der ankoppelnden Phononen (nach /94/).

zur Spinwellenseitenbande deutlich mit steigender Temperatur abnimmt. Für die Bande bei $18\,210\text{ cm}^{-1}$ konnten aus demselben Grund wie für $18\,304\text{ cm}^{-1}$ keine analogen Messungen durchgeführt werden.

Die relative Abnahme liegt in der Größenordnung der Spinwellenrenormierung. Möglicherweise kann man die Banden deshalb auch als Zweimagnonenbanden zu den Spinwellenseitenbanden erklären. Faßt man die Differenz in der Energieverschiebung zu einer mittleren Zweimagnonenenergie auf dem Rand der BZ von 102 cm^{-1} als temperaturunabhängige Wechselwirkungsenergie mit der Störstelle auf, 7 cm^{-1} für $18\,275\text{ cm}^{-1}$ und 12 cm^{-1} für $17\,978\text{ cm}^{-1}$, so erhält man die korrigierten Meßpunkte in Abb. 81. Da der Temperaturgang der Meßpunkte recht unempfindlich gegen Änderungen der Wechselwirkungsenergie in großen Grenzen ist, relative Änderungen von 100% ändern innerhalb der Meßfehler nicht den experimentellen Temperaturverlauf, kommt den gemessenen Kurven reale Bedeutung zu. Der Temperaturgang der Energieverschiebung der beiden Banden zur jeweiligen Spinwellenseitenbande wird durch dieselbe Funktion beschrieben wie der Temperaturgang der Energie der Zweimagnonenbanden.

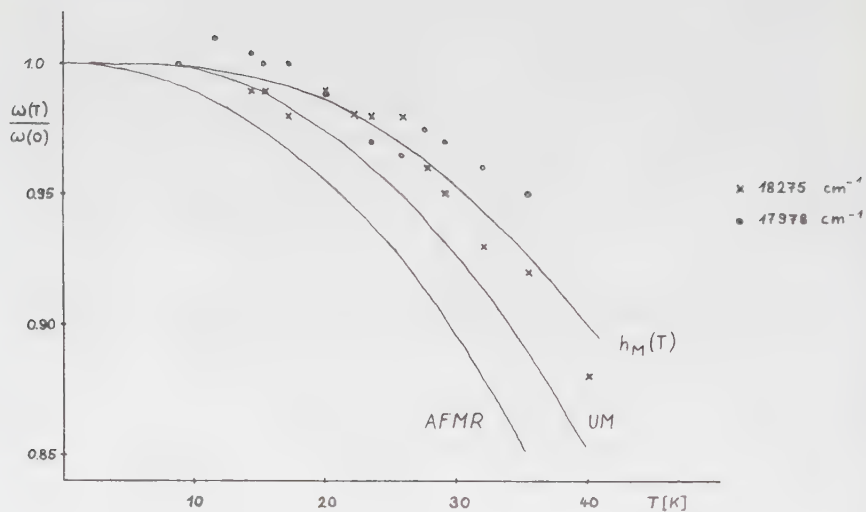


Abb. 81. Die korrigierte und normierte Energiedifferenz zweier Banden zur jeweiligen Spinwellenseitenbande als Funktion der Temperatur.

3.2.5. Temperaturabhängigkeit der Fluoreszenzbande

In der Abb. 82 sind die α -polarisierten Spektren der Gruppen um $18\ 300$ und $18\ 100\text{ cm}^{-1}$ so übereinander gezeichnet, daß sich die beiden Spinwellenseitenbanden decken. Die Bandenstruktur ist für beide Gruppen sehr ähnlich und hängt offensichtlich nur von der Energieverschiebung gegenüber der Seitenbande ab. Der Vergleich mit den Messungen von Röder et al. identifiziert die Banden als Phononenseitenbanden. Die in der vorliegenden Arbeit in Emission gemessenen Banden zeigen im wesentlichen dieselbe Struktur wie die in Abb. 80. Nur die scharfen Maxima bei 300 und 450 cm^{-1} werden hier nicht so deutlich gefunden, während bei höheren Temperaturen die Bande bei $17\ 978\text{ cm}^{-1}$ intensiver ist. Allerdings ist die Zuordnung dieser Bande als Phononenseitenbande nach dem Vorhergehenden nicht sicher.

Die Abhängigkeit der Fluoreszenzbande von der Störstellenstruktur ist jedoch noch weitgehender, als es in dieser Abbildung zum Ausdruck kommt. Es wurde bereits darauf hingewiesen, daß die verschiedenen oben diskutierten Gruppen sich deutlich in ihrem Temperaturverhalten unterscheiden. Bildet man für jede Temperatur die Summe der Intensitäten aller wesentlichen Linien und Banden der Gruppen, so erhält man eine Kurve, die mit einem einzigen Normierungsfaktor die Intensität der Fluoreszenzbande bis etwa 36K gut beschreibt. In der Abb. 83 ist der Temperaturgang der verschiedenen Gruppen, der Fluoreszenz und der eben erwähnten Summe für π -Polarisation dargestellt. Für die anderen Polarisationen erhält man ähnliche Ergebnisse. Die Übereinstimmung zwischen gemessener und der auf das Plateau dieser Kurve normierten gerechneten Kurve ist gut.

Neben der Intensität ändert sich auch die Position der Fluoreszenzbande im engen Zusammenhang mit der Störstellenstruktur. Bei Temperaturen um 60K , wo die Störstellenstruktur völlig verschwunden ist, liegt das Maximum der Fluoreszenzbande bei $17\ 550\text{ cm}^{-1}$. Bei 5K , wo das lokalisierte Exziton bei $18\ 344\text{ cm}^{-1}$ stark die Emission beeinflusst, liegt das Maximum etwa bei $17\ 450\text{ cm}^{-1}$, d.h. etwa um dieselbe Energie wie das gestörte gegen das ungestörte Exziton zum Roten verschoben. Zwischen 5 und 10K nimmt die Intensität der Gruppe um $18\ 300\text{ cm}^{-1}$ sehr stark ab und die Struktur der Emission wird im wesentlichen durch die Gruppe um

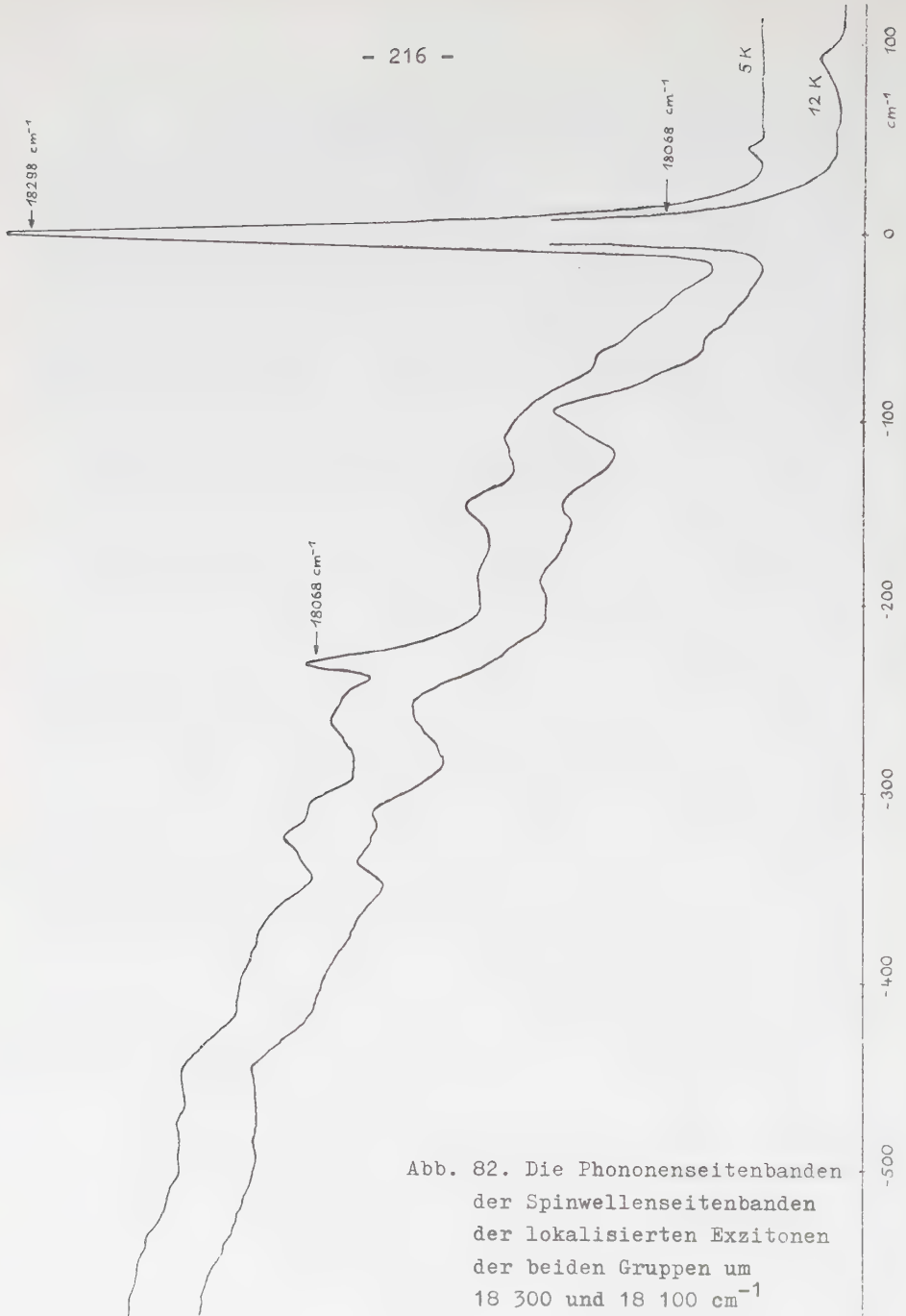


Abb. 82. Die Phononenseitenbanden
der Spinwellenseitenbanden
der lokalisierten Exzitonen
der beiden Gruppen um
 $18\,300$ und $18\,100 \text{ cm}^{-1}$
in α -Polarisation.

$18\,100\text{ cm}^{-1}$ bestimmt. Das gestörte Exziton dieser Gruppe ist um etwa 220 cm^{-1} gegenüber dem der $18\,300\text{ cm}^{-1}$ -Gruppe verschoben. In diesem Temperaturbereich verschiebt sich auch das Maximum der Fluoreszenzbande um etwa 200 cm^{-1} zu niedrigeren Energien. Von 20K an nimmt die Intensität der zweiten Gruppe ab, so daß sie oberhalb von 36K praktisch nicht mehr zu identifizieren ist. In diesem Temperaturbereich nimmt die Maximumsenergie der Fluoreszenzbande wieder zu und erreicht bei 40K Werte um $17\,400\text{ cm}^{-1}$. Der Temperaturgang der Maximumsposition ist in Abb. 83 mit eingezeichnet.

Nach diesen Messungen kann festgestellt werden, daß die Fluoreszenzbande bei tiefen Temperaturen eindeutig von den Störstellen des Kristalls abhängt.

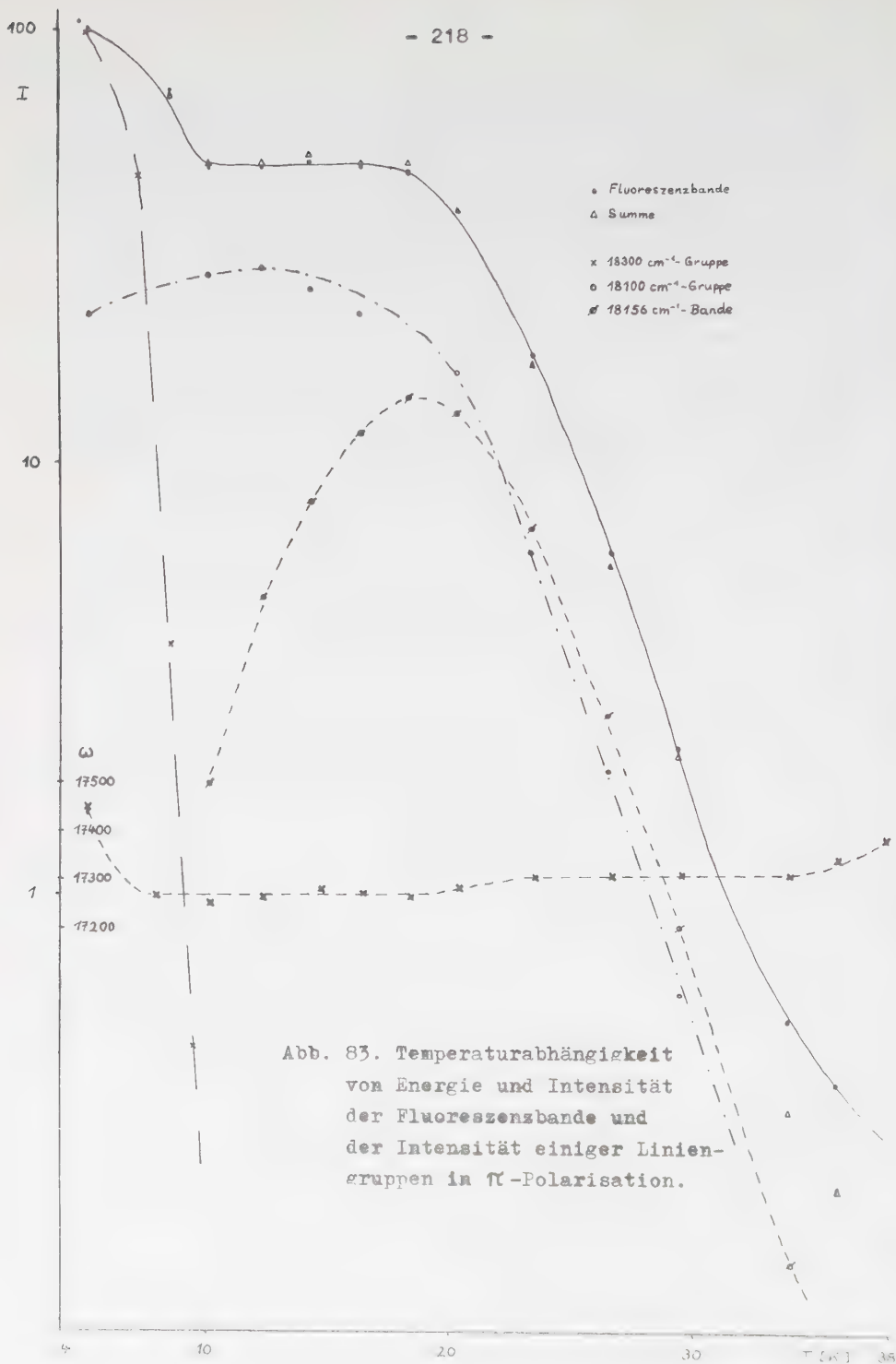


Abb. 83. Temperaturabhängigkeit
von Energie und Intensität
der Fluoreszenzbande und
der Intensität einiger Linien-
gruppen in π -Polarisation.

Zusammenfassung

1. Im Teil I der Arbeit wird zunächst das Spinwellenkonzept an Hand eines einfachen ferromagnetischen Isolators erläutert und an dem einfachen Beispiel der mittleren Besetzungszahl eines Spinwellenzustandes der Gebrauch von zweizeitigen, temperaturabhängigen Green'schen Funktionen zur Berechnung von Korrelationsfunktionen gezeigt.
2. In I.2 wird im Hinblick auf die Anwendung auf MnF_2 ein einfacher Antiferromagnet mit zwei gegeneinander versetzten Bravaisgittern behandelt. Es wird die Näherung des effektiven Anisotropiefeldes verwendet. Die Austauschwechselwirkung wird nicht auf die Wechselwirkung zweitnächster, antiferromagnetisch gekoppelter Ionen beschränkt. Die Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation wird bis zum ersten nicht-konstanten Glied entwickelt und der daraus resultierende nicht-quadratische Anteil des Hamiltonoperators als Störglied betrachtet.
3. Mit Hilfe der zweizeitigen, temperaturabhängigen Green'schen Funktionen wird in der Spinwellennäherung die Renormierung der Spinwellenenergie berechnet. Man erhält als Ergebnis, daß sich die Berücksichtigung der Wechselwirkung in einem $\vec{k}$ - und T-abhängigen Faktor auswirkt.
4. Bei der Spezialisierung auf MnF_2 , bei dem nur die Austauschintegrale zwischen den ersten drei nächsten Nachbarn verschiedenen von Null sind, wird gezeigt, daß man die Renormierung auch in anderer Weise interpretieren kann, nämlich in einer von $\vec{k}$ unabhängigen Renormierung der Austauschintegrale, die jedoch für die verschiedenen Austauschintegrale verschieden ist. Allein aus diesem Grund ergibt sich die scheinbare $\vec{k}$ -Abhängigkeit des Renormierungsfaktors der Spinwellenenergie. Diese $\vec{k}$ -Abhängigkeit hat nichts mit der physikalischen $\vec{k}$ -Abhängigkeit der Renormierung lang- und kurzweiliger Magnonen zu tun.

5. In I.3 wird der Ramanstreuquerschnitt für die Zweimagnonenstreuung mit Hilfe der Green'schen Funktionen in der Spinwellennäherung berechnet. Den Ausgangspunkt bildet der effektive Wechselwirkungs-Hamiltonoperator zwischen Spin- und Photonensystem von Fleury und Loudon /19/, der unabhängig von der tatsächlichen Dynamik der Wechselwirkung allein aus Symmetriebetrachtungen folgt. Ein von der Symmetrie erlaubter Anisotropiefaktor wird berücksichtigt.
6. Für den Fall freier Spinwellen wird die Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoff-Transformation für die Spinoperatoren sowohl im Wechselwirkungs-Hamiltonoperator als auch im Hamiltonoperator des Spinsystems nach dem konstanten Glied abgebrochen. Der Streuquerschnitt ist in diesem Fall unabhängig vom Anisotropiefaktor und proportional zu einer gewichteten Zustandsdichte für Zweimagnonenzustände. Die Gewichtsfaktoren gewichten für die verschiedenen Streugeometrien verschiedene Bereiche der BZ.
7. Für den Fall wechselwirkender Spinwellen wird die Wurzel bis zur Ordnung $1/s$ entwickelt. Die entsprechenden Glieder werden konsistent sowohl im Wechselwirkungs-Hamiltonoperator als auch im Hamiltonoperator des Spinsystems berücksichtigt. Zur Vereinfachung der Rechnung wird von den Austauschintegralen zwischen Ionen verschiedener Untergitter nur dasjenige zwischen nächsten solchen Nachbarn verschieden von Null angenommen. Es zeigt sich, daß die Berücksichtigung der Wechselwirkung im Wechselwirkungs-Hamiltonoperator nur zu einem Intensitätsfaktor führt, der vom Anisotropiefaktor abhängt. Die Temperaturabhängigkeit der Maximumsposition der Zweimagnonenbanden erweist sich als Folge der Energierenormierung und hängt somit mit der Berücksichtigung der Wechselwirkung im Hamiltonoperator des Spinsystems zusammen. Als Ergebnis erhält man für die Green'sche Funktion, deren Imaginärteil im wesentlichen den Streuquerschnitt ergibt, einen umfangreichen Ausdruck, der für den Spezialfall MnF_2 vereinfacht werden kann. Die vereinfachte Green'sche Funktion (3.50) unterscheidet

sich von der entsprechenden Green'schen Funktion für den wechselwirkungsfreien Fall durch das Auftreten des Intensitätsfaktors, das Auftreten eines Nenners und der Energienormierung.

8. Der II. Teil der Arbeit befaßt sich mit den ramanspektroskopischen Messungen. Um das Phononenspektrum von MnF_2 als Intensitätsstandard bei der Untersuchung der Zweimagnonenstreuung verwenden zu können, wurde es zunächst einer genauen Untersuchung in vergleichenden Messungen mit MgF_2 unterzogen.
9. Die gruppentheoretischen Aussagen zum Phononenspektrum werden umrissen, die Faktorgruppenanalyse durchgeführt und die Normalschwingungen positiver Parität für $\vec{k}=0$ dargestellt.
10. Das Temperaturverhalten der Phononen wird zum ersten Mal in einem großen Temperaturbereich von 10 bis 300K untersucht. Es kann die große Ähnlichkeit der isomorphen Kristalle MnF_2 und MgF_2 festgestellt werden. Die Phononen der Symmetrien E_g , A_{1g} und B_{2g} zeigen das erwartete Verhalten. Bei Temperaturerniedrigung nehmen die Energien zu und die Halbwertsbreiten ab. Die relative Energiezunahme ist für alle diese Phononen sehr ähnlich. Die Intensitäten ändern sich entsprechend dem Stokes'schen Faktor.
11. Die Energie des B_{1g} -Phonons nimmt in beiden Kristallen bei Temperaturerniedrigung ab. Das ist offensichtlich eine Eigenschaft der Rutilstruktur. Die relative Energieänderung ist jedoch bei MnF_2 wesentlich stärker als bei MgF_2 .
12. Bei der Intensität des B_{1g} -Phonons tritt ein deutlicher Unterschied auf. Bei MgF_2 ändert sich die Intensität entsprechend dem Stokes'schen Faktor. Bei MnF_2 ist die Abnahme der Intensität mit abnehmender Temperatur wesentlich stärker als theoretisch erwartet. Die Linie kann unterhalb von 65K praktisch nicht mehr nachgewiesen werden. Da die Energie des Phonons bei tiefen Temperaturen in der Größenordnung der Spinwellenenergie

auf dem Rand der BZ ist, liegt die Vermutung nahe, daß das unerwartete Verhalten mit der antiferromagnetischen Ordnung zusammenhängt. Die endgültige Klärung steht noch aus.

13. Bei MnF_2 kann eine Zweiphononenlinie nachgewiesen werden, die bei der Anregung mit den Laserlinien um 500 nm, d.h. in der Nähe einer Absorptionsstelle, auftritt. Sie wird als 2. Oberton des E_g -Phonons interpretiert. Die anomal große HWB des B_{2g} -Phonons auch bei tiefen Temperaturen wird durch die Fermi-resonanz mit dem Oberton erklärt.
14. In II.3. werden zunächst die Ergebnisse der Gruppentheorie für die Ramanstreuung an Spinwellen unter Berücksichtigung der vollen magnetischen Gruppe zusammengestellt.
15. Die Abschätzung der Intensität der Einmagnonenlinie von Loudon /19/ wird experimentell überprüft. Aus den Messungen kann geschlossen werden, daß die Abschätzung eher zu optimistisch ist.
16. Die ramanspektroskopischen Untersuchungen der Zweimagnonenbanden werden mit den Aussagen der im I. Teil entwickelten Theorie verglichen. Es werden theoretische Spektren ohne und mit Wechselwirkung der Spinwellen für OK berechnet. Die Übereinstimmung bei Berücksichtigung der Wechselwirkung mit den experimentellen Spektren bei 5K ist gut. Die Position der Banden wird richtig wiedergegeben. Eine geringe Diskrepanz zwischen theoretischer und experimenteller HWB der $DB_{2,3g}$ -Bande wird auf die vollständige Vernachlässigung der Spinwellendämpfung zurückgeführt.
17. Nach den im Teil I erhaltenen Gleichungen wird in einem Iterationsprogramm die Renormierung für verschiedene Symmetriepunkte berechnet. Die im Ramaneffekt gemessene Temperaturabhängigkeit der Spinwellenenergie für $T < T_N$ wird mit der theoretischen Kurve verglichen. Es wird ausgezeichnete Übereinstimmung bis nahe T_N erhalten. Dabei wird allerdings die Wechselwirkungsenergie zwischen den beiden Spinwellen ver-

nachlässigt. Bei Berücksichtigung dieser Wechselwirkung ist die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment bis 60K für die $DB_{2,3g}$ -Bande gut, für die DB_{1g} -Bande befriedigend. Die Banden können bis etwa $2T_N$ verfolgt werden. Bis zu dieser Temperatur nimmt die Energie auf etwa $1/3$ des Tieftemperaturwertes ab. Die Abnahme ist besonders stark in der Umgebung von T_N .

18. Die Messungen werden mit der Theorie von Pershan und Oseroff /68/ verglichen, die einen Zusammenhang zwischen der Energie kurzwelliger Magnonen und dem von den Spins herrührenden Beitrag zur spezifischen Wärme herstellen. Da in /68/ ein isotroper Antiferromagnet behandelt wird, wird aus den Ramanmessungen eine mittlere Spinwellenenergie bestimmt und mit der theoretischen Kurve verglichen. Bis 40K ist die Übereinstimmung gut. Die Messungen zeigen, daß die Zweimagnonen-Ramanstreuung eine geeignete Methode ist, den entsprechenden Anteil der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen experimentell zu bestimmen.
19. Das Temperaturverhalten von Maximums- und integrierter Intensität und der HWB der Zweimagnonenbanden wird mit den Aussagen der Theorie in Teil I verglichen. Es kann ein Wert für den Anisotropiefaktor η von 2 ± 0.6 abgeschätzt werden. Die Übereinstimmung zwischen experimenteller und theoretischer integrierter Intensität für $\eta=2$ bis 60K ist befriedigend.
20. Bei Maximumsintensität und HWB treten große Unterschiede zwischen Theorie und Experiment auf. Die theoretische HWB ändert sich praktisch nicht mit der Temperatur, während die Maximumsintensität mit der Temperatur zunimmt, beides im Gegensatz zum Experiment. Diese Diskrepanz ist eine Folge der Vernachlässigung der Dämpfung.
21. Die Dämpfung wird phänomenologisch berücksichtigt und durch Anpassen der theoretischen HWB an die experimentelle für verschiedene Temperaturen eine Dämpfungskonstante abgeschätzt. Dabei ergibt sich auch die Temperaturabhängigkeit der Maxi-

mumsintensität in befriedigender Übereinstimmung mit dem Experiment. Die notwendigen Dämpfungskonstanten sind mit z.B. 10 cm^{-1} bei 50K recht groß. Die theoretische Begründung für diese große Dämpfung steht noch aus.

22. Die theoretischen Bandenprofile bei Berücksichtigung der Dämpfung zeigen im Gegensatz zu den experimentellen Spektren keine Struktur mehr. Außerdem ist der höherenergetische Ausläufer der theoretischen Bande zu intensiv. Eine befriedigende Theorie der Dämpfung hat dies zu berücksichtigen.
23. Im Teil III der Arbeit werden die Ergebnisse der Untersuchung der Emission von MnF_2 im Bereich von 18 500 bis 17 000 cm^{-1} erläutert.
24. In der kristalleigenen Struktur wird die $\text{H}1\sigma$ -Spinwellenseitenbande zum $\text{M}1\sigma$ -Exziton beobachtet. Es kann zum ersten Mal die Temperaturabhängigkeit der Energiedifferenz bestimmt werden. Man findet bis 40K gute Übereinstimmung mit der Energierenormierungskurve, so daß diese Messungen einen zusätzlichen Beweis für die Interpretation als Spinwellenseitenbande darstellen.
25. Es werden in der kristalleigenen Struktur zum ersten Mal das $\text{M}2\sigma$ Exziton und zwei elektrisch dipolaktive hot-bands in Emission beobachtet. Die hot-bands werden den in Absorption beobachteten Übergängen $\text{E}1\sigma$ und $\text{E}1\pi$ zugeordnet. Es werden für beide Seitenbanden Wechselwirkungsenergien für die Wechselwirkung zwischen Exziton und Magnon abgeschätzt. Sie liegen in der Größenordnung der entsprechenden in Absorption bestimmten Werte. Der Temperaturgang der Energiedifferenz der beiden Seitenbanden zum Exziton $\text{M}1\sigma$ wird näherungsweise durch die Energierenormierung oder den Temperaturgang der Untergittermagnetisierung beschrieben, ähnlich wie für die beiden in Absorption beobachteten Banden.
26. Es werden verschiedene störsstelleninduzierte Strukturen beobachtet und die große Ähnlichkeit mit der kristalleigenen Struktur aufgezeigt. Außer den bereits bekannten Seitenbanden werden

zum ersten Mal zwei hot-bands beobachtet, die den gestörten $E1\sigma$ - und $E1\pi$ -Übergängen zugeordnet werden. Es werden Energien für die Wechselwirkung mit dem gestörten Exziton abgeschätzt und der Temperaturgang der Energiedifferenz bestimmt. Man findet gute Übereinstimmung mit der entsprechenden Kurve für die Untergittermagnetisierung.

27. Es wird sowohl in der kristalleigenen als auch in den fehlerstelleninduzierten Strukturen jeweils eine Bande gefunden, die möglicherweise durch die Kopplung drittnächster Nachbarn im Zweizentrenprozeß entsteht. Die große HWB und eine große Wechselwirkungsenergie sprechen jedoch gegen eine solche Interpretation, so daß die endgültige Zuordnung unklar bleibt.
28. Es wird in den verschiedenen Strukturen jeweils eine Bande gefunden, die als Zweimagnonenseitenbande zur Spinwellenseitenbande des jeweiligen Exzitons interpretiert werden kann. Der Temperaturgang der Energiedifferenz der Banden, die in einem genügend großen Temperaturbereich zu beobachten sind, ist in guter Übereinstimmung mit der Energienormierung.
29. Der enge Zusammenhang zwischen Fluoreszenzbande und den Störstellenstrukturen hinsichtlich Intensität und Position wird aufgezeigt.

Anhang zu I.1.4.

Beweis der Identität

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} I(\vec{k}-\vec{p}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \frac{I(\vec{k}) I(\vec{p})}{I(0)} \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle$$

für raumzentrierte Gitter und bei Beschränkung der Wechselwirkung auf nächste Nachbarn.

Mit der Voraussetzung erhält man aus (1.10)

$$I(\vec{k}) = \sum_{\vec{l}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{l}) J(\vec{l}) = J \sum_{\vec{\delta}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{\delta}) = zJ \sigma(\vec{k}).$$

$\vec{\delta}$ ist ein Vektor zwischen nächsten Nachbarn und z deren Anzahl. Für ein raumzentriertes Gitter durchläuft $\vec{\delta}$ alle möglichen Vektoren der Art $1/2(\pm \vec{a}_x \pm \vec{a}_y \pm \vec{a}_z)$. Damit ergibt sich für $\sigma(\vec{k})$:

$$\sigma(\vec{k}) = \cos(k_x \frac{a}{2}) \cos(k_y \frac{a}{2}) \cos(k_z \frac{a}{2}).$$

Die Behauptung reduziert sich also auf:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \sigma(\vec{k}-\vec{p}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \sigma(\vec{k}) \sigma(\vec{p}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle.$$

Mit Hilfe des Additionstheorems für die cos-Funktion wird $\sigma(\vec{k}-\vec{p})$ in 8 Glieder zerlegt. Diese Glieder haben die Form $\phi(\vec{k}) \phi(\vec{p})$, mit $\phi(\vec{p}) = \tau_1(p_x \frac{a}{2}) \tau_2(p_y \frac{a}{2}) \tau_3(p_z \frac{a}{2})$, wobei $\tau_{1,2,3} = \cos$ oder $\sin$. (Siehe auch Seite 60). Hier tritt auch das Glied $\sigma(\vec{k}) \sigma(\vec{p})$ auf.

Da $\sin$ eine ungerade Funktion und $\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle$ symmetrisch bezüglich der drei Spiegelebenen $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ im $\vec{k}$ -Raum ist, heben sich bei der Summation über $\vec{p}$ bei allen Gliedern, die mindestens einen $\sin$ -Faktor enthalten, die Beiträge je zweier innerer Punkte der BZ auf. Nur auf der Oberfläche der BZ bleiben Punkte übrig, die einen Beitrag zur Summe liefern.

Für $\frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \sin(p_x \frac{a}{2}) \cos(p_y \frac{a}{2}) \cos(p_z \frac{a}{2}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle$ z.B. sind dies die Punkte $(1, p_y, p_z)$. Die Anzahl dieser Punkte ist $N_y N_z$, oder grob gesprochen $N^{2/3}$. Damit erhält man also:

$$\frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \sigma(\vec{k}-\vec{p}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \sigma(\vec{k}) \sigma(\vec{p}) \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + O(1/N^{1/3}),$$

d.h. bis auf Glieder der Ordnung $1/N^{1/3}$ die Behauptung. (Siehe dazu auch die Gleichung (3.34).)

Zu 2.5.1.

Die Kommutatoren können sehr einfach bestimmt werden, wenn von folgender Identität, unter Umständen wiederholt, Gebrauch gemacht wird:

$$[\tilde{A}, \tilde{B}\tilde{C}] = [\tilde{A}, \tilde{B}]\tilde{C} + \tilde{B}[\tilde{A}, \tilde{C}]$$

Für die verschiedenen, in 2.5.1. benötigten, Kommutatoren findet man damit:

$$\begin{aligned} [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_q] &= -\tilde{a}_q^+ \delta_{K,q} & [\tilde{b}_K, \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_q] &= 0 \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_q] &= 0 & [\tilde{b}_K, \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_q] &= \tilde{b}_q \delta_{K,q} \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_q^+ \tilde{b}_q^+] &= 0 & [\tilde{b}_K, \tilde{a}_q^+ \tilde{b}_q^+] &= \tilde{a}_q^+ \delta_{K,q} \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_q \tilde{b}_q] &= -\tilde{b}_q \delta_{K,q} & [\tilde{b}_K, \tilde{a}_q \tilde{b}_q] &= 0 \end{aligned}$$

Zu 2.5.2.

Die Kommutatoren von $\tilde{a}_K^+$ und $\tilde{b}_K$ mit $\tilde{H}_4$:

$$\begin{aligned} [\tilde{a}_K^+, \tilde{b}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \tilde{a}_s] &= -\delta_{K,s} \tilde{b}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= 0 \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_s] &= -\delta_{K,p} \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_s \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{b}_p \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r \tilde{a}_s] &= -\delta_{K,r} \tilde{b}_p \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_s - \delta_{K,s} \tilde{b}_p \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= -\delta_{K,q} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r \tilde{a}_s] &= -\delta_{K,r} \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_s - \delta_{K,s} \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r \\ [\tilde{a}_K^+, \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_s] &= 0 \end{aligned}$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}}^+ \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}}^+ \tilde{b}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{r}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{r}}^+ \tilde{a}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{r}}^+ \tilde{a}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{r}} \tilde{a}_{\vec{s}}] = 0$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{r}}^+ \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{r}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{r}} \tilde{a}_{\vec{s}}] = 0$$

$$[\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{p}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}$$

Faktorisierung der Green'schen Funktionen höherer Ordnung:
Man erhält in den Bewegungsgleichungen folgende zusätzliche
Ausdrücke:

$$\begin{aligned} \ll [\tilde{a}_{\vec{k}}, \tilde{H}_4]; \tilde{Q} \gg &= -\frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} I_{\vec{p}} \left[\ll \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+; \tilde{Q} \gg + 2 \ll \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}; \tilde{Q} \gg + \right. \\ &\quad \left. + 4 \ll \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}+\vec{p}}; \tilde{Q} \gg \right] - \\ &- \frac{1}{4N} I_{\vec{k}} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} \ll \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}; \tilde{Q} \gg - \\ &- \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} (L_{\vec{p}-\vec{k}} + L_{\vec{q}} - 2L_{\vec{p}}) \ll \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}; \tilde{Q} \gg - \\ &- \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} (L_{\vec{p}-\vec{q}} + L_{\vec{k}} - 2L_{\vec{p}}) \ll \tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}; \tilde{Q} \gg \\ \ll [\tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{H}_4]; \tilde{Q} \gg &= \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} I_{\vec{p}} \left[\ll \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}; \tilde{Q} \gg + 2 \ll \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{q}-\vec{p}}; \tilde{Q} \gg + \right. \\ &\quad \left. + 4 \ll \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}}; \tilde{Q} \gg \right] + \\ &+ \frac{1}{4N} I_{\vec{k}} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} \ll \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}; \tilde{Q} \gg + \\ &+ \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} (L_{\vec{k}} + L_{\vec{p}} - 2L_{\vec{q}}) \ll \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{p}}; \tilde{Q} \gg + \\ &+ \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} (L_{\vec{p}-\vec{q}} + L_{\vec{k}-\vec{p}} - 2L_{\vec{p}}) \ll \tilde{b}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{k}-\vec{p}}; \tilde{Q} \gg \end{aligned}$$

Es treten sechs verschiedene Zweiteilchen-Greenfunktionen auf, die folgendermaßen faktorisiert werden:

$$\langle\langle \tilde{b}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3^+; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,2} \langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{b}_1^+ \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_3^+; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{1,3} \langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{b}_1^+ \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_2^+; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

$$\langle\langle \tilde{b}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,3} \langle\langle \tilde{a}_1 \tilde{b}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_2^+; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{2,3} \langle\langle \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_2 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_1; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

$$\langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,2} \langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{b}_1^+ \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{2,3} \langle\langle \tilde{b}_2^+ \tilde{b}_2 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_1^+; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

$$\langle\langle \tilde{a}_1 \tilde{b}_2 \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,2} \langle\langle \tilde{a}_1 \tilde{b}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{1,3} \langle\langle \tilde{a}_1 \tilde{b}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_2; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

$$\langle\langle \tilde{b}_1^+ \tilde{b}_2 \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,2} \langle\langle \tilde{b}_1^+ \tilde{b}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{1,3} \langle\langle \tilde{b}_1^+ \tilde{b}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{b}_2; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

$$\langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx \delta_{1,3} \langle\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_1 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_2^+; \tilde{Q} \rangle\rangle + \delta_{2,3} \langle\langle \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_2 \rangle\rangle \langle\langle \tilde{a}_1^+; \tilde{Q} \rangle\rangle$$

Damit gehen die Glieder höherer Ordnung über in:

$$\begin{aligned} \langle\langle [\tilde{a}_k^+, \tilde{H}_4]; Q \rangle\rangle \approx & -\frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left\{ 2I_{\vec{p}} (\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle\rangle + \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle) + 4I_0 \langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle + \right. \\ & \left. 4(L_{\vec{p}} + L_{\vec{k}} - L_0 - L_{\vec{p}-\vec{k}}) \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle \right\} \langle\langle \tilde{a}_k^+; \tilde{Q} \rangle\rangle - \\ & -\frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[2I_{\vec{k}} (\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle + \langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle) + 4I_{\vec{k}-\vec{p}} \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle\rangle \right] \langle\langle \tilde{b}_k^+; \tilde{Q} \rangle\rangle \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle [\tilde{b}_k^+, \tilde{H}_4]; \tilde{Q} \rangle\rangle \approx & \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left\{ 2I_{\vec{p}} (\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle\rangle + \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle) + 4I_0 \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle + \right. \\ & \left. + 4(L_{\vec{p}} + L_{\vec{k}} - L_0 - L_{\vec{p}-\vec{k}}) \langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle \right\} \langle\langle \tilde{b}_k^+; \tilde{Q} \rangle\rangle + \\ & + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[2I_{\vec{k}} (\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle + \langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle) + 4I_{\vec{k}-\vec{p}} \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle \right] \langle\langle \tilde{a}_k^+; \tilde{Q} \rangle\rangle \end{aligned}$$

Mit $\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle = \langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle$, im Falle $B_z=0$, und mit $\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle\rangle = \langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle$ erhält man die Größen $G(\vec{p}, \vec{k})$ und $H(\vec{p}, \vec{k})$ aus (2.33).

An den letzten beiden Gleichungen ist zu erkennen, wo man im Fall $B_z \neq 0$ anzusetzen hat. Die Gleichungen sind nicht symmetrisch in $\langle\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle\rangle$ und $\langle\langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle\rangle$.

Zu 2.6.2.

Man hat die Summe $\sum_{\vec{p}} L_{\vec{p}-\vec{k}} 2\tilde{n}_{\vec{p}}$ mit $\tilde{n}_{\vec{p}} = \langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle = \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle$ umzuformen. Nach (2.17) und (2.18) gilt:

$$L_{\vec{p}-\vec{k}} = z_1 L_1 \cos[(p_z - k_z)c] + \frac{1}{2} z_3 L_3 \{ \cos[(p_x - k_x)a] + \cos[(p_y - k_y)a] \}$$

Die cos-Faktoren werden zerlegt und man erhält z.B. für den Term proportional zu L_1 einen Faktor

$$\cos(p_z c) \cos(k_z c) + \sin(p_z c) \sin(k_z c)$$

Bei der Summation über die BZ verschwinden alle Summen, die als Faktor den Sinus einer Komponente von $\vec{p}$ enthalten, weil der Sinus eine ungerade Funktion ist und sich $\tilde{n}_{\vec{p}}$ bei Spiegelung an σ_x , σ_y und σ_z im reziproken Gitter nicht ändert. In der Mitte und auf dem Rand der BZ verschwinden die sin-Faktoren. Bis auf die Vorfaktoren $\cos(k_z c)$, $\cos(k_x a)$ und $\cos(k_y a)$ sind die Teilsummen in $\sum_{\vec{p}} L_{\vec{p}-\vec{k}} 2\tilde{n}_{\vec{p}}$ gleich denjenigen, die in $\sum_{\vec{p}} L_{\vec{p}} 2\tilde{n}_{\vec{p}}$ auftreten, so daß man zusammenfassen kann:

$$\sum_{\vec{p}} (L_{\vec{p}} - L_{\vec{p}-\vec{k}}) 2\tilde{n}_{\vec{p}} = z_1 L_1 [1 - \cos(k_z c)] \sum_{\vec{p}} \cos(p_z c) 2\tilde{n}_{\vec{p}} + \\ + \text{Glieder mit } p_x \text{ und } p_y$$

Mit $\cos \alpha = 1 - 2\sin^2(\alpha/2)$ kann man weiter umformen:

$$\sum_{\vec{p}} (L_{\vec{p}} - L_{\vec{p}-\vec{k}}) 2\tilde{n}_{\vec{p}} = (L_0 - L_{\vec{k}}) \sum_{\vec{p}} 2\tilde{n}_{\vec{p}} - 4z_1 L_1 \sin^2(k_z \frac{c}{2}) \sum_{\vec{p}} \sin^2(p_z \frac{c}{2}) 2\tilde{n}_{\vec{p}} + \dots$$

Mit den anderen Gliedern in (2.32) zusammengefaßt, erhält man (2.46).

Zu 3.3.1.

Es werden folgende Kommutatoren benötigt:

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{q}}] = 0$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}, \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger}] = 0$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} (\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger})$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{q}}] = [\tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}} \tilde{b}_{\vec{q}}] = -\delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger}] = [\tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger}$$

In die Bewegungsgleichung geht der Hamiltonoperator aus (2.8) ein:

$$\tilde{H}_2 = \sum_{\vec{k}} \left[(E_{\vec{k}} + E_z) \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} + (E_{\vec{k}} - E_z) \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}} \right] - \sum_{\vec{k}} c I_{\vec{k}} (\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} + \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}})$$

Da E_z für die beiden Untergitter mit verschiedenen Vorzeichen in (2.8) eingeht, andererseits die Kommutatoren mit $\tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}}$ und $\tilde{b}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}}$ stets gleiches Vorzeichen haben, fällt E_z aus der Bewegungsgleichung heraus.

Zu 3.3.2.

Bei Berücksichtigung der Wechselwirkung der Spinwellen treten folgende zusätzliche Kommutatoren auf:

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{r}, \vec{k}} \tilde{a}_{\vec{k}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{p}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{k}}, \tilde{b}_{\vec{p}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{r}, \vec{k}} \tilde{b}_{\vec{p}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{b}_{\vec{p}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{s}} + \delta_{\vec{k}, \vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{r}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{r}} \tilde{b}_{\vec{s}}$$

$$[\tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{k}}, \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \tilde{a}_{\vec{r}} \tilde{a}_{\vec{s}}] = \delta_{\vec{k}, \vec{q}} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{r}} \tilde{a}_{\vec{s}}$$

$$\begin{aligned}
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= \delta_{K,q} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s + \delta_{K,r} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_s - \delta_{K,s} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_K \\
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{b}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \tilde{a}_s] &= \delta_{K,p} \tilde{b}_K^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \tilde{a}_s \\
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= \delta_{K,q} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s - \delta_{K,r} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_s - \delta_{K,s} \tilde{a}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r \tilde{b}_K \\
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{b}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \tilde{a}_s] &= -\delta_{K,p} \tilde{b}_K^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_r^+ \tilde{a}_s \\
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= \delta_{K,r} \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{b}_K^+ \tilde{b}_s - \delta_{K,s} \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_K \\
 [\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K, \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s] &= \delta_{K,p} \tilde{b}_K^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s + \delta_{K,q} \tilde{b}_K^+ \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_s - \delta_{K,r} \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_K^+ \tilde{b}_s \\
 &\quad - \delta_{K,s} \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_r^+ \tilde{b}_K
 \end{aligned}$$

Mit $\tilde{H}_4$ aus (2.22) findet man für die verschiedenen Kommutatoren:

$$\begin{aligned}
 [\tilde{a}_K \tilde{b}_K, \tilde{H}_4] &= \\
 &= \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} I_{\vec{p}} \left\{ 2 \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_K \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_{-q-K} + 2 \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_K \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_{-q-K} + \tilde{a}_K \tilde{a}_p \tilde{b}_q \tilde{b}_{-q-K} + \right. \\
 &\quad \left. + \tilde{b}_K \tilde{b}_p \tilde{a}_q \tilde{a}_{-q-K} + 4 \tilde{a}_{K+p} \tilde{b}_K \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_{p+q} + 4 \tilde{b}_{K+p} \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_{-q-K} \right\} + \\
 &+ \frac{1}{4N} I_K \sum_{\vec{p}, \vec{q}} [\tilde{a}_K \tilde{a}_p^+ \tilde{a}_q^+ \tilde{a}_{p+q-K} + \tilde{b}_K \tilde{b}_p^+ \tilde{b}_q^+ \tilde{b}_{p+q-K}] + \\
 &+ \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} [-\vec{p}-\vec{q}+K, -\vec{p}-2\vec{q}] [\tilde{a}_{\vec{p}-\vec{q}}^+ \tilde{a}_q \tilde{a}_{K-\vec{p}} \tilde{b}_K + \tilde{b}_{\vec{p}-\vec{q}}^+ \tilde{b}_q \tilde{b}_{K-\vec{p}} \tilde{a}_K] + \\
 &+ \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}} [-\vec{K}+\vec{p}, -2\vec{q}] [\tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}}^+ \tilde{a}_{K+q} \tilde{a}_p \tilde{a}_K + \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}}^+ \tilde{b}_{K+q} \tilde{b}_p \tilde{b}_K]
 \end{aligned}$$

Nach Linearisierung bekommt man:

$$\begin{aligned}
 [\tilde{a}_K \tilde{b}_K, \tilde{H}_4] &\approx \frac{1}{2N} \sum_{\vec{p}} K(\vec{K}, \vec{p}) \tilde{C}_{\vec{p}} + \frac{1}{2N} \sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{K}) \tilde{C}_{\vec{K}} + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}, \vec{K}) \tilde{a}_K \tilde{b}_K + \\
 &+ \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} F(\vec{K}, \vec{p}) \tilde{a}_K \tilde{b}_K + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \langle \tilde{a}_K \tilde{b}_K \rangle_0 \tilde{a}_K^+ \tilde{b}_K^+ - \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \langle \tilde{a}_K^+ \tilde{b}_K^+ \rangle_0 \tilde{a}_K \tilde{b}_K
 \end{aligned}$$

$$[\tilde{a}_k^+ \tilde{b}_k^+, \tilde{H}_4] =$$

$$= -\frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} I_{\vec{p}} \left\{ \tilde{\sigma}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^+ + \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ + \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ + \right. \\ \left. + \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^+ + \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{q}+\vec{p}}^+ + \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ \right\} - \\ - \frac{1}{4N} I_{\vec{k}} \sum_{\vec{p}} \left[\tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ + \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ \right] - \\ - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[I_{\vec{p}-\vec{k}} + I_{\vec{p}} - 2I_{\vec{p}} \right] \left[\tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ + \tilde{b}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \right] - \\ - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[I_{\vec{p}-\vec{q}} + I_{\vec{k}} - 2I_{\vec{p}} \right] \left[\tilde{a}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ + \tilde{\sigma}_{\vec{q}-\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \right]$$

Linearisiert:

$$[\tilde{a}_k^+ \tilde{b}_k^+, \tilde{H}_4] \approx -\frac{1}{2N} \sum_{\vec{p}} K(\vec{k}, \vec{p}) \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ - \frac{1}{2N} \sum_{\vec{p}} H(\vec{p}, \vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ + \tilde{a}_{\vec{p}}^+) - \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}}(\vec{p}, \vec{p}, \vec{k}) \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ - \\ - \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} F(\vec{k}, \vec{p}) \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ - \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}}(\vec{k}, \vec{k}, \vec{p}) I_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}}(\vec{p}, \vec{p}, \vec{p}) I_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+$$

$$[\tilde{a}_k^+ \tilde{a}_k^+, \tilde{H}_4] =$$

$$= \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} I_{\vec{p}} \left\{ 2\tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^+ - \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ + \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ - \right. \\ \left. - \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ + \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{q}+\vec{p}}^+ - \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ \right\} + \\ + \frac{1}{4N} I_{\vec{k}} \sum_{\vec{p}} \left[\tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^+ - \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ \right] + \\ + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[I_{\vec{p}} + I_{\vec{q}} + \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ \right] \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \\ - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} \left[I_{\vec{p}} + I_{\vec{q}} + \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}-\vec{k}}^+ \right] \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+$$

Linearisiert:

$$[\tilde{a}_k^+ \tilde{a}_k^+, \tilde{H}_4] \approx -\frac{1}{2N} \sum_{\vec{p}} L(\vec{k}, \vec{p}) \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+ + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}}(\vec{p}, \vec{p}, \vec{k}) (\tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ + \tilde{a}_{\vec{p}}^+) + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \gamma_{\vec{p}}(\vec{p}, \vec{p}, \vec{p}) I_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{\sigma}_{\vec{p}}^+$$

Hier wurde $\langle \tilde{a}_k^+ \tilde{b}_k^+ \rangle = \langle \tilde{a}_k \tilde{b}_k \rangle$ ausgenutzt.

Für $[\tilde{b}_K^+ \tilde{b}_K^-, \tilde{H}_4]$ erhält man einen Ausdruck, der sich von dem obigen nur dadurch unterscheidet, daß $\tilde{b}$ und $\tilde{b}^+$ durch $\tilde{a}$ und $\tilde{a}^+$ und umgekehrt ersetzt sind. Nach der Linearisierung erhält man denselben Ausdruck wie oben.

Als weiterer Kommutator tritt auf:

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}, \vec{s}} \phi_j(\vec{p}) [\vec{F}(\vec{p}\vec{q}\vec{r}\vec{s}), \tilde{H}_2] = \\
 & = \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} E_{\vec{k}} \phi_j(\vec{p}) \left\{ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- - \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^- \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + 2\tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^- - \right. \\
 & \quad \left. - 2\tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{q}-\vec{p}} + 2\eta \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}+\vec{p}}^- - 2\eta \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}+\vec{p}}^- \right\} + \\
 & + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} E_{\vec{k}} \phi_j(\vec{p}) \left\{ \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^- - \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + 2\tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}}^- - \right. \\
 & \quad \left. - 2\tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{q}-\vec{p}} + 2\eta \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}}^- \tilde{b}_{\vec{k}-\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^- - 2\eta \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}}^- \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}}^- \right\} + \\
 & + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} E_{\vec{k}} \phi_j(\vec{k}) \left\{ \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} - \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^- \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} - \right. \\
 & \quad \left. - \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} \right\} + \\
 & + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} s_{I_{\vec{k}}} \phi_j(\vec{p}) \left\{ 2\tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{q}-\vec{p}} + 2\tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{q}-\vec{p}} + \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + \right. \\
 & \quad \left. + \tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{q}}^- \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + 2\eta \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}+\vec{p}} + 2\eta \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}} \right\} - \\
 & - \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} s_{I_{\vec{k}}} \phi_j(\vec{p}) \left\{ 2\tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} + 2\tilde{b}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}}^- \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + \right. \\
 & \quad \left. + \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} + 2\eta \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}+\vec{p}} + 2\eta \tilde{b}_{\vec{k}-\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}+\vec{p}} \tilde{a}_{\vec{k}}^+ \right\} + \\
 & + \frac{1}{4N} \sum_{\vec{k}, \vec{p}, \vec{q}} s_{I_{\vec{k}}} \phi_j(\vec{k}) \left\{ \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} + \tilde{b}_{\vec{k}} \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{p}+\vec{q}-\vec{k}} - \tilde{b}_{\vec{k}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^- \tilde{b}_{\vec{q}}^- \tilde{b}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} - \right. \\
 & \quad \left. - \tilde{a}_{\vec{k}} \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{q}}^- \tilde{a}_{\vec{k}+\vec{p}-\vec{q}} \right\}
 \end{aligned}$$

Hier wurde von $\phi_j(0)=0$ Gebrauch gemacht, wie es für $j=2,3,4$ gilt.

Nach der Linearisierung bekommt man:

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}, \vec{q}, \vec{r}, \vec{s}} \phi_j(\vec{p}) [\tilde{F}(\vec{p}\vec{q}\vec{r}\vec{s}), \tilde{H}_2] \approx \\
 & \approx \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{a}_{\vec{p}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle) \sum_{\vec{K}} E_{\vec{K}} \phi_j(\vec{K}) \tilde{B}_{\vec{K}} + \frac{1}{N} \sum_{\vec{p}} \phi_j(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle) \sum_{\vec{K}} s I_{\vec{K}} \tilde{B}_{\vec{K}} - \\
 & - 2\eta \frac{1}{4N} \sum_{\vec{K}} G(\vec{K}) [E_{\vec{K}} (\langle \tilde{a}_{\vec{K}}^+ \tilde{b}_{\vec{K}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{K}} \tilde{b}_{\vec{K}} \rangle) - s I_{\vec{K}} (\langle \tilde{a}_{\vec{K}}^+ \tilde{a}_{\vec{K}} \rangle + \langle \tilde{b}_{\vec{K}}^+ \tilde{b}_{\vec{K}} \rangle)] \sum_{\vec{p}} \phi_j(\vec{p}) \tilde{B}_{\vec{p}} + \\
 & + 2\eta \frac{1}{4N} \sum_{\vec{p}} G(\vec{p}) (\langle \tilde{a}_{\vec{p}}^+ \tilde{b}_{\vec{p}}^+ \rangle + \langle \tilde{a}_{\vec{p}} \tilde{b}_{\vec{p}} \rangle) \sum_{\vec{K}} E_{\vec{K}} \phi_j(\vec{K}) \tilde{B}_{\vec{K}}
 \end{aligned}$$

Die zweite Zeile verschwindet, weil die eckige Klammer gleich Null ist. Man überzeugt sich davon leicht, wenn man die Mittelwerte aus (2.29) mit $B_z=0$ einsetzt.

Tabelle A1. Temperaturabhängigkeit der Energie
der Phononen E_g, A_{1g} und B_{2g} von MnF_2

$T [K]$	$E_g [cm^{-1}]$	$A_{1g} [cm^{-1}]$	$B_{2g} [cm^{-1}]$
308	246	341	
288	246	341	
264	246.5	341.5	477
249	246.5	342	478
233	247	343	477
218	248	344	478
190	247.5	343.5	478.5
187	248	344	
163	248	344	480
140	248	345	480
137	248.5	345	480
120	248.5	345.5	480
110	248.5	346	480.5
100	248.5	346	481
90	249	346.5	482
80	249	346	480.5
76	248.5	346.5	481
70	249	347	481
66	249	347	481.5
49	249	348	
28	248	348	
10	249	349	482
	$249.7(1-4.6 \cdot 10^{-5}T)$		$482.9(1-4.6 \cdot 10^{-5}T)$
		$348.6(1-7.4 \cdot 10^{-5}T)$	

Fehler der beobachteten Wellenzahlen: $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$

Tabelle A2. Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreite in cm^{-1}
der Phononen von MnF_2

T [K]	B_{1g}	E_g	A_{1g}	B_{2g}	Rayleigh
295	7	11.5	12	23	5.5
257	6	10	10	19	5.5
225	6	9	10	16	6
203	6	9	9	13	6
182	7	8	8	13	6
162	7	8	8	12	5.5
150	6	7.5	8	12	6
133	6	7	7.5	9	5.5
116	7	6.5	7	9	6
102	6	6.5	7	9	6
80	7	6	6.5	9	6
67		5.5	6	8	5
60		5	6	8	5
50		6	6	8	5
40		5	5.5	8	5
28		5.5	6	8	5
6		2	2.5		1.8

Tabelle A3. Temperaturverhalten des B_{1g} -Phonons von MgF_2

T [K]	HWB [cm ⁻¹]	ω [cm ⁻¹]	ω^{ber} [cm ⁻¹]	$\frac{I(T)}{I(294)}$	$\frac{n(T)+1}{n(294)+1}$
294	5	92.0	91.8	1.000	1.000
280		91.5	91.6	0.754	0.965
260		91.5	91.4	0.947	0.912
247	5	91.0	91.3	0.779	0.879
239		91.5	91.2	0.765	0.860
223		91.0	91.1	0.796	0.817
206		91.0	90.9	0.719	0.772
201	5	90.5	90.8	0.746	0.762
191		90.5	90.7	0.730	0.734
174		90.5	90.6	0.799	0.688
156		91.0	90.4	0.677	0.642
151	5	90.5	90.3	0.654	0.629
138		90.5	90.2	0.670	0.596
120		90.0	90.0	0.800	0.549
101		90.0	89.8	0.496	0.502
92	4.5	90.0	89.7	0.475	0.481
85		89.5	89.7	0.450	0.465
82		89.5		0.517	0.458
80	5	89.5		0.488	0.454
68	4.5	89.5	89.5	0.475	0.427

$$\omega^{ber} = 88.8(1 + 1.14 \cdot 10^{-4}T)$$

Fehler der beobachteten Wellenzahlen: $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$

I: integrierte Intensität

n: Bosefaktor

Tabelle A4. Temperaturverhalten des E_g -, A_{1g} - und B_{2g} -Phonons von MgF_2

T [K]	E_g		A_{1g}		B_{2g}	Rayleigh
	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]
294	293	6	406.5	9	513.5	4.75
280	293		407.5			
260	293		407.5			
247	294	6	408	7	516.5	4.75
239	294		408.5			
223	295		408.5			
206	294.5		408.5			
201	295	5.5	409	7	516.5	5
191	295		409.5			
174	296		410			
156	296		410.5			
151	295.5	5	409.5	6	517	5
138	295.5		410.5			
120	296		410.5			
101	296	5	411	5.5	519	4.5
92	296	5	410.5	5.5	518.5	4.5
85	296	5	411		519	4
82	296		410.5		519	
80		4.5	410.5	5	519	4.5
68	296.5	4.5	411	5	519	4.5

Fehler der beobachteten Wellenzahlen: $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$

Ausgleichsgeraden:

$$\omega_{E_g} = 297.4(1 - 4.7 \cdot 10^{-5} T)$$

$$\omega_{A_{1g}} = 412.4(1 - 4.2 \cdot 10^{-5} T)$$

$$\omega_{B_{2g}} = 520.8(1 - 4.2 \cdot 10^{-5} T)$$

Tabelle A5. Energienormierung für verschiedene $\bar{k}$ -Werte
als Funktion der Temperatur

T [K]	$h_{\bar{k}}(T)$				
	Γ	X,A	M	R	Z
1	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
10	1.000	0.999	0.999	0.999	0.999
15	0.998	0.995	0.995	0.995	0.995
20	0.993	0.986	0.986	0.986	0.986
30	0.976	0.953	0.953	0.952	0.952
40	0.948	0.901	0.902	0.900	0.899
46	0.926	0.860	0.862	0.859	0.858
50	0.908	0.828	0.830	0.827	0.826
55	0.881	0.779	0.781	0.778	0.776
60	0.841	0.712	0.715	0.710	0.707
62	0.817	0.672	0.675	0.669	0.667

Tabelle A6. Temperaturverhalten der Zweimagnonenbanden

T [K]	DB _{1g}		DB _{2,3g}	
	$\omega(T)$ [cm ⁻¹]	$\omega(T)/\omega(0)$	$\omega(T)$ [cm ⁻¹]	$\omega(T)/\omega(0)$
4.8	98 ± 1	1.00	106 ± 1	1.00
11.2	97 ± 1	1.00	107 ± 1	1.00
14.2	98 ± 1	1.00	107 ± 1	1.00
17.2	97 ± 1	1.00	106 ± 1	1.00
19.8	97 ± 1	1.00	107 ± 1	1.00
21.6	97 ± 1	1.00	106 ± 1	1.00
24.3	96 ± 1	0.99	105 ± 1	0.99
28.1	94 ± 1	0.96	103 ± 2	0.97
33.3	93 ± 1	0.95	101 ± 2	0.95
36.3	90 ± 1.5	0.92	97 ± 2	0.92
40.3	88 ± 1.5	0.90	96 ± 2	0.91
47.0	84 ± 1.5	0.86	93 ± 3	0.88
50.0	81 ± 1.5	0.83	89 ± 3	0.84
55.0	78 ± 2	0.80	85 ± 3	0.80
60.0	69 ± 3	0.71	80 ± 3	0.75
62.8	63 ± 3	0.65	78 ± 4	0.74
65.5	55 ± 3	0.56	73 ± 5	0.69
67.0	52 ± 4	0.54	63 ± 5	0.59
70.0	48 ± 5	0.50	49 ± 5	0.46
75.0	34 ± 5	0.35	38 ± 5	0.36
82.0	35 ± 5	0.36	38 ± 5	0.36
90.0	30 ± 5	0.31	34 ± 5	0.32
103	31 ± 10	0.32	30 ± 10	0.28

$$\omega(0) := 97.5 \text{ cm}^{-1}$$

$$\omega(0) := 106.5 \text{ cm}^{-1}$$

Tabelle A7. Vergleich der inneren Energie des Spinsystems
mit Messungen der Spinwellenenergie nach
der Theorie von Pershan und Oseroff /68/.

T	C_M n. /69/	$\frac{1}{\sqrt{s(s+1)}} \int_0^T C_M(\tau) d\tau$	Spalte 3 in	$1-h(T)$ n. Abb. 44	$\omega'(1-h(T))$
K	cal/Mol K	cal/Mol	cm^{-1}		cm^{-1}
15	0.53	1.34	0.47	0.005	0.26
20	0.90	2.55	0.89	0.014	0.72
25	1.26	4.38	1.53	0.028	1.43
30	1.60	6.80	2.38	0.047	2.40
35	1.90	9.75	3.41	0.071	3.62
40	2.18	13.2	4.62	0.100	5.10
45	2.49	17.15	6.00	0.131	6.68
50	2.84	21.65	7.58	0.171	8.72
55	3.24	26.79	9.37	0.220	11.2
60	3.83	32.77	11.46	0.286	14.6
65	4.85	40.10	14.03		
66.5	5.20	48.60	14.92		

$$\omega' = 51 \text{ cm}^{-1}$$

Tabelle A8. Eigenschaften einiger Linien und Banden der kristallinen Struktur in Abhängigkeit von der Temperatur

T [K]	M1σ			H1σ			E1π			E1σ			18375 cm ⁻¹		
	HWB [cm ⁻¹]	I	HWB [cm ⁻¹]	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]	I	HWB [cm ⁻¹]	I	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]	I	ω [cm ⁻¹]	HWB [cm ⁻¹]	I	ω [cm ⁻¹]
5.0	1.5	0.10	-	-51.5									24	1.11	-50.5
6.0	1.5	0.114	4	-51.5									28	2.93	-48.5
6.7	1.5	0.118	4	-51.5									27	2.42	-46.0
8.1	1.5	0.10	4	-51.5									22	0.888	-45.0
9.0	2	0.13	5	-51.5									20	0.841	-42.5
11.9	1.8	0.104	4.5	-51.5									-	-	-
14.3	1.8	0.067	5.5	-51.5	17	0.06			37.5				22	0.317	-45.5
15.3	2	0.070	5	-51.5	13	0.069			36.5				22	0.232	-49.5
17.0	2	0.096	6	-51.5	17	0.119			37.5				23	0.252	-45.5
19.8	3	0.064	6	-51.0	21	0.150			38.0	0.084		53	24	0.235	-48.0
21.9	3.5	0.078	8	-50.5	21	0.210			35.5	0.128		52	25	0.258	-43.5
23.7	4.5	0.095	8.5	-51.0	20	0.262			37.0	0.131		51.0	18	0.260	-45.5
25.8	5	0.075	8.5	-50.5	20	0.292			36.0	0.148		51.0	23	0.271	-44.0
27.8	8	0.065	9.5	-50.0	22	0.316			35.5	0.192		49.5	26	0.295	-45.5
29.3	7	0.050	10	-50.0	24	0.321			34.0	0.260		49.0	34	0.300	-43.0
31.9	9	0.052	12	-47.5	24	0.352			35.5	0.332		50.5	33	0.277	-42.5
35.6	-	0.071	16	-47.0	22	0.443			33.0	0.337		48.0	34	0.304	-43.0
40.1	-	-	26	-46.0	27	0.435			32.0	0.385		46.0	30	0.268	-43.0

Die Intensitäten sind auf die von H1σ bezogen, ω = ω_{M1σ} - ω_{Linie}

Literaturverzeichnis

- /1/ Kittel, C., Quantentheorie der Festkörper
Oldenbourg Verlag München (1970)
- /2/ Elliott, R.J., M.F. Thorpe, J.Appl.Phys. 39, 802 (1968)
- /3/ Bloch, F., Z.Physik 61, 206 (1930), 74, 295 (1932)
- /4/ Holstein, I., H. Primakoff, Phys.Rev. 58, 1098 (1940)
- /5/ Dyson, F.J., Phys.Rev. 102, 1217 (1956)
- /6/ Zittartz, J., Z.Physik 184, 506 (1965)
- /7/ Bonch-Bruevich, V.L., S.V. Tjablikov,
Green's Function Method in Statistical Mechanics
- /8/ Zubarev, D.N., Fortschritte d. Physik 9, 275 (1961)
- /9/ Lines, M.E., Phys.Rev. B3, 1749 (1971)
- /10/ Kubo, R., Phys.Rev. 87, 568 (1952)
- /11/ Bogoljubov, N.N., J.Physics (Moskau) 9, 23 (1949)
- /12/ Okazaki, A., K.C. Turberfield, R.W.H. Stevenson
Phys.Lett. 8, 9 (1964)
- /13/ Nikotin, O., P.A. Lindgård, O.W. Dietrich,
J.Phys.C 2, 1168 (1969)
- /14/ White, R.M., Phys.Lett. 19, 453 (1965)
- /15/ Low, G.G., Inelastic Scattering of Neutrons
International Atomic Energy Agency, Wien (1965)
Seite 453
- /16/ Sell, D.D., R.L. Greene, R.M. White,
Phys.Rev. 158, 489 (1967)
- /17/ Bass, F.G., M.I. Kaganov, Zh.Eksp.Teor.Fiz. 37, 1390 (1959)
(Sov.Phys.-JETP 10, 986 (1960))
- /18/ Elliott, R.J., R. Loudon, Phys.Lett. 3, 189 (1963)
- /19/ Fleury, P.A., R. Loudon, Phys.Rev. 166, 514 (1968)
- /20/ Shen, Y.R., N. Bloembergen, Phys.Rev. 143, 373 (1966)
Shen, Y.R., J.Appl.Phys. 38, 1490 (1967)
- /21/ Moriya, T., J.Phys.Soc.Japan 23, 490 (1967)
- /22/ Fleury, P.A., S.P.S. Porto, L.E. Cheesman, H.J. Guggenheim
Phys.Rev.Lett. 17, 84 (1966)

- /23/ Fleury, P.A., Phys.Rev.Lett. 21, 151 (1968)
 Fleury, P.A., H.J. Guggenheim, Phys.Rev.Lett. 24, 1346 (1970)
 Macfarlane, R.M., Phys.Rev.Lett. 25, 1454 (1970)
 Mathai, P.M., E.J. Allin, Can.J.Phys. 48, 1518 (1970)
 Allen, Jr., S.J., H.J. Guggenheim, Phys.Rev. B4, 937 (1971)
- /24/ Halley, J.W., I. Silvera, Phys.Rev.Lett. 15, 654 (1965)
- /25/ Tanabe, Y., T. Moriya, S. Sugano,
 Phys.Rev.Lett. 15, 1023 (1965)
- /26/ Halley, J.W., Phys.Rev. 149, 423 (1966)
 Phys.Rev. 154, 458 (1966)
- /27/ Fleury, P.A., Bull.Am.Phys.Soc. 12, 420 (1967)
- /28/ Davydov, A.S., Quantenmechanik, Deutscher Verlag der
 Wissenschaften, Berlin (1967)
- /29/ Elliott, R.J., M.F. Thorpe, J.Phys. C 2, 1630 (1969)
- /30/ Thorpe, M.F., J.Appl.Phys. 41, 892 (1970)
- /31/ Solyom, J., Z.Physik 243, 382 (1971)
- /32/ Vaks, V.G., A.I. Larkin, S.A. Pikin,
 Zh.Eksp.Teor.Fiz. 53, 281 (1967)
 (Sov.Phys.-JETP 26, 188 (1968))
- /33/ Pikalev, E.M., M.A. Savchenko, J. Solyom,
 Zh.Eksp.Teor.Fiz. 55, 1404 (1967)
 (Sov.Phys.-JETP 28, 734 (1969))
- /34/ Davies, R.W., S.R. Chinn, H.J. Zeiger, Phys.Rev. B4, 992
 (1971)
- /35/ Chinn, S.R., R.W. Davies, H.J. Zeiger, Phys.Rev. B4, 4017
 (1971)
- /36/ Akhiezer, A.I., V.G. Bar'yakhtar, S.V. Peletninski,
 Spin waves, North Holland, Amsterdam (1968)
- /37/ Davies, R.W., Phys.Rev. B5, 4598 (1972)
- /38/ Chinn, S.R., H.J. Zeiger, J.R. O'Connor, Phys.Rev. B3, 1709
 (1971)
- /39/ Cottam, M.G., Sol.St.Comm. 10, 99 (1972)
- /40/ Cottam, M.G., Sol.St.Comm. 11, 889 (1972)
- /41/ Natoli, C.R., J. Ranninger, J.Phys. C 6, 323 (1973)
- /42/ Ammann, H., Diplomarbeit München (1970)
- /43/ Poppinger, M., Diplomarbeit München (1972)
- /44/ Topp, J.A., H.W. Schrötter, H. Hacker, J. Brandmüller
 Rev.Sci.Inst. 40, 1164 (1969)
 Topp, J.A., W. Schmidt, Rev.Sci.Inst. 42, 1683 (1971)

- /45/ Topp, J.A., Dissertation München (1974)
- /46/ Hammer, H., Dissertation München (1973)
- /47/ Meltzer, R.S., L.L. Lohr, J.Chem.Phys. 49, 541 (1960)
- /48/ Gibbons, D.F., Phys.Rev. 115, 1194 (1959)
- /49/ Borovik-Romanov, A.S., N.M. Kreines, M.A. Talalaev,
Zh.Eksp.Teor.Fiz.Pis.Red. 13, 80 (1971)
(Sov.Phys.-JETP Lett. 13, 54 (1971))
- /50/ Strong, J.Phys.Chem.Sol. 15, 146 (1960)
- /51/ Cornwell, J.F., Group Theory and Electronic Energy Bands
in Solids, North-Holland Amsterdam (1969)
- /52/ Wilson, Jr., E.B., J.C. Decius, P.C. Cross,
Molecular Vibrations,
McGraw-Hill, London (1955)
- /53/ Loudon, R., Adv.Phys. 13, 423 (1964); 14, 621 (1965)
- /54/ Matossi, F., J.Chem.Phys. 19, 1543 (1951)
- /55/ Katiyar, R.S., R.S. Krishnan, J.Ind.Inst.Sci. 52, 121 (1969)
- /56/ Born, M., K. Huang, Dynamical Theory of Crystal Lattices,
Oxford Univ. Press (1954)
- /57/ Landau, L.D., E.M. Lifschitz, Quantenmechanik,
Akademie Verlag, Berlin (1967)
- /58/ Porto, S.T.S., P.A. Fleury, T.C. Damen, Phys.Rev. 154, 522
(1967)
- /59/ Stout, J.W., J.Chem.Phys. 31, 709 (1959)
- /60/ Kiefer, W., Appl.Spectroscopy 28, 115 (1974)
- /61/ Buchanan, M., W.J.L. Buyers, R.J. Elliott, R.T. Harley,
W. Hayes, A.M. Perry, J.D. Saville,
J.Phys. C 5, 2011 (1972)
- /62/ Wigner, E.P., Group Theory and its Application to the
Quantum Mechanics of Atomic Spectra,
Academic Press, New York (1959)
- /63/ Bradley, C.J., B.L. Davies, Rev.Mod.Phys. 40, 359 (1968)
- /64/ Dimmock, J.O., R.G. Wheeler, Phys.Rev. 127, 391 (1962)
- /65/ Cracknell, A.P., J.Phys. C 2, 500 (1969)
- /66/ Koster, G.F., J.O. Dimmock, R.G. Wheeler, H. Statz,
Properties of the Thirty-Two Point Groups,
M.I.T. Press, Cambridge, Mass. (1963)
- /67/ Loudon, R., Adv.Phys. 17, 243 (1968)

- /68/ Pershan, P.S., A. Oseroff, Phys.Rev. B1, 2359 (1970)
- /69/ Stout, J.W., E. Catalano, J.Chem.Phys. 23, 2013 (1955)
- /70/ Fleury, P.A., Phys.Rev. 180, 591 (1969)
- /71/ Brya, W.J., P.M. Richards, R.R. Bartkowski,
Phys.Rev.Lett. 28, 826 (1972)
- /72/ Halley, J.W., I. Silvera, Phys.Rev. 149, 415 (1966)
- /73/ Joshua, S.J., A.P. Cracknell, J.Phys. C 2, 24 (1969)
- /74/ Joshua, S.J., phys.stat.sol. 41, 309 (1970)
- /75/ Greene, R.L., D.D. Sell, W.M. Yen, A.L. Schawlow,
Phys.Rev.Lett. 15, 656 (1965)
- /76/ Sell, D.D., R.L. Greene, W.M. Yen, A.L. Schawlow,
J.Appl.Phys. 37, 1229 (1966)
- /77/ Dietz, R.E., A. Misetich, H.J. Guggenheim,
Phys.Rev.Lett. 16, 841 (1966)
- /78/ Meltzer, R.S., M. Lowe, D.S. McClure,
Phys.Rev. 180, 561 (1969)
- /79/ Eine Zusammenstellung verschiedener Arbeiten findet
man in dem Artikel von
Sell, D.D., J.Appl.Phys. 39, 1030 (1968)
Einige weitere Arbeiten sind:
Huffman, D.R., J.Appl.Phys. 40, 1334 (1969)
Tsushima, K., K. Aoyagi, S. Sugano, J.Appl.Phys. 41, 1238
(1970)
Imbusch, G.F., H.J. Guggenheim, Phys.Lett. 26A, 625 (1968)
- /80/ Cracknell, A.P., Adv.Phys. 17, 367 (1968)
- /81/ Davydov, A.S., Theory of Molecular Excitons
McGraw-Hill, New York (1962)
- /82/ Knox, R.S., Theory of Excitons, Solid State Phys.Suppl. 5
Academic Press, New York (1963)
- /83/ Dietz, R.E., A.E. Meixner, H.J. Guggenheim, A. Misetich
Phys.Rev.Lett. 21, 1067 (1968)
- /84/ Stokowski, S.E., D.D. Sell, Phys.Rev. B3, 208 (1971)
Stokowski, S.E., D.D. Sell, H.J. Guggenheim,
Phys.Rev. B4, 3141 (1971)
- /85/ Elliott, R.J., M.F. Thorpe, G.F. Imbusch, R. Loudon,
J.B. Parkinson, Phys.Rev.Lett. 21, 147 (1968)

- /86/ Dietz, R.E., A.E. Meixner, H.J. Guggenheim,
J.Luminescence 1,2, 279 (1970)
North-Holland, Amsterdam
- /87/ Johnson, F.M., A.H. Nethercot, Phys.Rev. 104, 847 (1956)
Phys.Rev. 114, 705 (1959)
- /88/ Tanabe, Y., K.-I. Gondaira, J.Phys.Soc.Jap. 22, 573 (1967)
- /89/ Parkinson, J.B., R. Loudon, J.Phys. C 2, 1568 (1968)
- /90/ Greene, R.L., D.D. Sell, R.S. Feigelson, G.F. Imbusch,
H.J. Guggenheim, Phys.Rev. 171, 600 (1968)
- /91/ Sell, D.D., S.E. Stokowski, Phys.Rev. B3, 2844 (1971)
- /92/ Misetich, A., R.E. Dietz, H.J. Guggenheim,
Localized Excitation in Solids S. 379
Plenum Press, New York (1968)
- /93/ Dietz, R.E., A. Misetich, Localized Excitation in Solids
S. 366, Plenum Press, New York (1968)
- /94/ Röder, U., W.von der Osten, W. Gebhardt,
Sol.St.Comm. 9, 733 (1971)
- /95/ Poulet, H., J.P. Mathieu,
Spectres de Vibration et Symétrie des Cristaux
Paris (1970)
- /96/ McWeeny, R., Symmetry, Oxford (1963)
Tinkham, M., Group Theory and Quantum Mechanics
New York (1964)
- /97/ Bethe, H.A., Z.Physik 71, 205 (1931)
- /98/ Oguchi, T., Phys.Rev. 117, 117 (1960)
- /99/ Anderson, P.W., Phys.Rev. 86, 694 (1952); 83, 1260 (1951)
- /100/ Fleury, P.A., S.P.S. Porto, R. Loudon,
Phys.Rev.Lett. 18, 658 (1967)
- /101/ Silvera, I.F., M. Tinkham, Bull.Am.Phys.Soc. 9, 714 (1964)
- /102/ Richards, P.L., Bull.Am.Phys.Soc. 10, 33 (1965)
- /103/ Chinn, S.R., H.J. Zeiger, Phys.Rev.Lett. 21, 1589 (1968)
- /104/ Chinn, S.R., H.J. Zeiger, J.R. O'Connor
J.Appl.Phys. 41, 894 (1970)
- /105/ Dietz, R.E., W.F. Brinkman, A.E. Meixner, H.J. Guggenheim
Phys.Rev.Lett. 27, 814 (1971)

Herrn J. Brandmüller danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit, für sein Interesse am Fortgang derselben und für die Bereitstellung von Institutsmitteln.

Weiterhin danke ich Herrn K. Stierstadt und dem Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft für die Bereitstellung des Kryostaten und der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Sachmittel bezüglich der Ramanapparatur, ebenso Herrn H. Bradatsch für die Versorgung mit flüssigem Stickstoff und flüssigem Helium.

Ferner gilt mein Dank der Bayerischen Akademie der Wissenschaften für die Benutzung der Rechenmaschine TR 440 des Leibnitz-Rechenzentrums.

Last but not least danke ich Herrn H. Hacker für den Einsatz für und die Ermunterung zu dieser Arbeit und meiner Kollegin H. Hammer und meinen Kollegen W. Nitsch, W. Rabe und F.X. Winter für mancherlei Hilfe durch Rat und Tat.

Lebenslauf

Am 9. Dezember 1943 wurde ich, Manfred Rainer Poppinger, als erstes Kind des Ingenieurs Herbert Poppinger und seiner Frau Anneliese, geborene Berger, in Eisleben geboren.

Von April 1949 bis Herbst 1952 besuchte ich die Vorschule und zwei Jahre die Volksschule in Frimley in Surrey, England und dann ein halbes Jahr die Volksschule in Rindbach am Ebensee in Österreich.

Nach Übersiedlung der Familie nach Nürnberg beendigte ich dort die Volksschule und trat im Herbst 1954 in die Oberrealschule an der Löbleinstraße ein. Im Frühjahr 1960 wechselte ich an die Gisela-Oberrealschule in München, wo ich im Juli 1964 die Reifeprüfung ablegte.

Nach zwei Jahren Bundeswehr begann ich im Wintersemester 1966/67 das Studium der Physik an der Universität München, das ich im Juli 1972 mit der Diplomprüfung abschloß. Die experimentelle Arbeit unter der Leitung von Prof. Dr. J. Brandmüller hatte die Erprobung eines optischen Helium-Kryostaten und den Aufbau einer Raman-Streuanordnung zur Untersuchung der Zweimagnonenstreuung an MnF_2 zum Thema.

Von August 1972 hatte ich die Stelle einer wissenschaftlichen Hilfskraft inne.

